

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-251277  
 (43)Date of publication of application : 22.09.1998

(51)Int.Cl.

C07F 7/18  
 G03G 5/06

(21)Application number : 09-180147

(71)Applicant : FUJI XEROX CO LTD

(22)Date of filing : 04.07.1997

(72)Inventor : YAMADA WATARU  
 NUKADA KATSUMI  
 IWASAKI MASAHIRO

(30)Priority

Priority number : 08187931 Priority date : 17.07.1996 Priority country : JP  
 09 861 07.01.1997

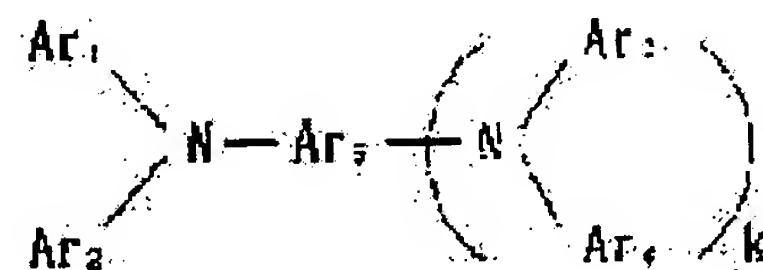
JP

## (54) SILANE COMPOUND AND ITS PRODUCTION

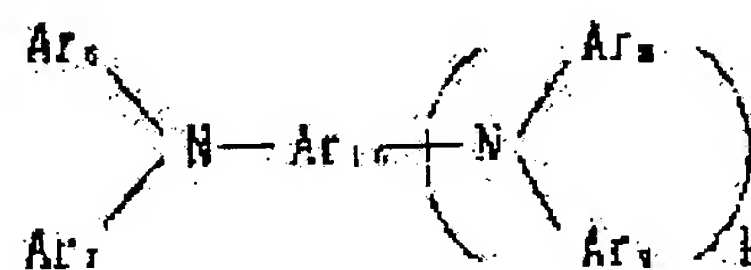
(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new silane compound having a specific triarylamine structure, exhibiting excellent solubility, membrane-forming property and three dimensional crosslinking hardenability, capable of forming a membrane excellent in charge-transfer, abrasion resistance and environment stability and useful for an organic electronic device.

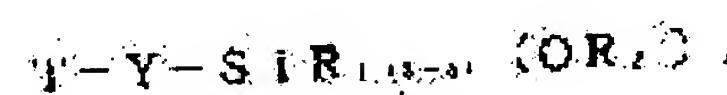
SOLUTION: A compound of formula I {Ar1 to Ar4 are each a (substituted) aryl; Ar5 is Ar1 or a (substituted) allylene; 1-4 groups out of Ar1 to Ar5 have each a substituting group such as a group (Z) of the formula: CH=CHYSiR1(3-a)(OR2)a [R1 is an alkyl, etc.; R2 is an alkyl, etc.; Y is a divalent group; (a)=1-3; (k) is 0 or 1], e.g. 2-[p-[(3,4-dimethylphenyl.bisphenyl-4-yl) amino]styryl]ethyl.trimethoxysilane. A compound of formula I is obtained, e.g. by reacting a compound of formula II (Ar6 to Ar10 are group corresponding to Ar1 to Ar5, respectively, and have CHO in the place of Z, etc.) with a compound of formula III [T is a group of formula: CH2PM(R3)2 (M is O or S; R3 is an alkyl, etc.), etc.].



I



II



III

## LEGAL STATUS

17.08.2001

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the  
 examiner's decision of rejection or application converted  
 registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

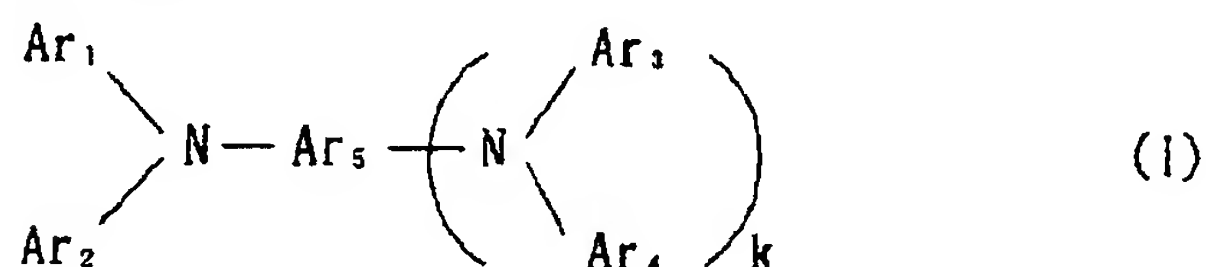
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The silane compound expressed with the following general formula (I).

[Formula 1]



Ar1 -Ar4 shows independently the aryl group which is not replaced [ substitution or ] among [ formula, respectively. Ar5 The aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ] is shown, and it is Ar1-Ar5. Inside 1-4 pieces - CH=CH-Y-SiR1(3-a) (OR2) a Or -CH2 CH2-Y-SiR1(3-a) (OR2) a It Has Substituent Shown. R1 -- the aryl group which is not replaced [ hydrogen, an alkyl group, substitution, or ] -- being shown -- R2 hydrogen, an alkyl group, or a trialkylsilyl group is shown, a shows the integer of 1-3, Y shows a divalent basis, and k shows 0 or 1 --]

[Claim 2] Aforementioned Ar1 -Ar5 They are 1-4 pieces inside. - CH=CH-Y-SiR1(3-a) (OR2) a Silane compound according to claim 1 which has the substituent shown.

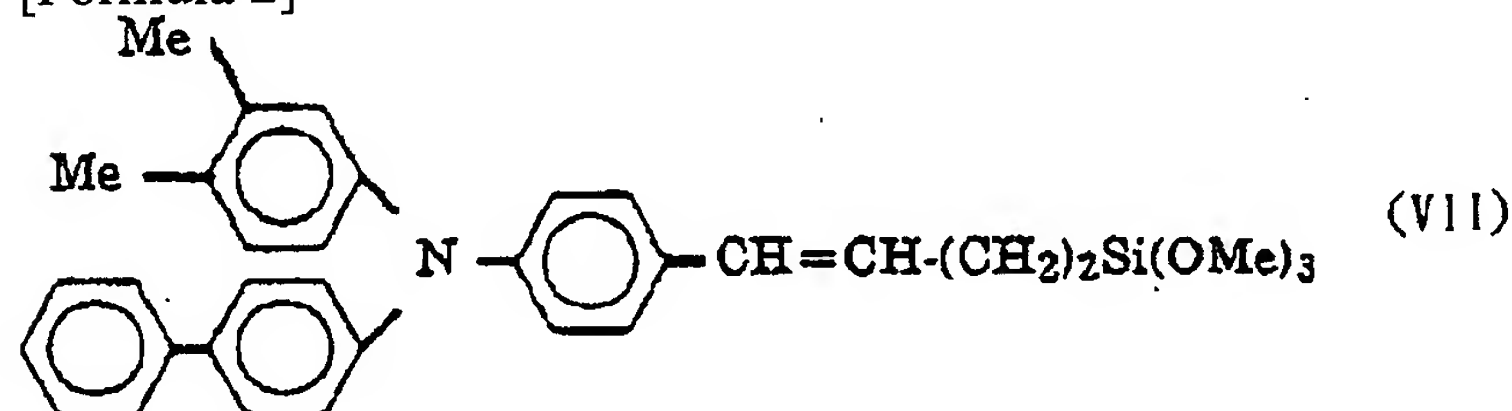
[Claim 3] Aforementioned Ar1 -Ar5 1-4 pieces are -CH2 CH2-Y-SiR1(3-a) (OR2) a inside. Silane compound according to claim 1 which has the substituent shown.

[Claim 4] Aforementioned Ar1 -Ar4 The phenyl group which has a substituent is shown and it is Ar5. The aryl group or arylene machine which has a substituent is shown. among Ar1 -Ar(s)5 1-4 pieces - CH=CH-Y-SiR1(3-a) (OR2) a Or -CH2CH2-Y-SiR1(3-a) (OR2) a It Has Substituent Shown. R1 The aryl group which is not replaced [ hydrogen, an alkyl group, substitution, or ] is shown, and it is R2. It is the silane compound according to claim 1 which hydrogen, an alkyl group, or a trialkylsilyl group is shown, a shows the integer of 1-3, and Y shows a divalent basis, and is characterized by k showing 0 or 1.

[Claim 5] When the integer, x', and x" of 1-15 are made into the integer of 2 to 15, respectively, x A silane compound given in any 1 term of the claims 2, 3, and 4 characterized by Above Y containing at least one or more sorts of arylene machines which are not replaced [ -(CH2) x-, -(Cx'H2x'-2)-, -(Cx"H2x"-4)- and substitution, or ].

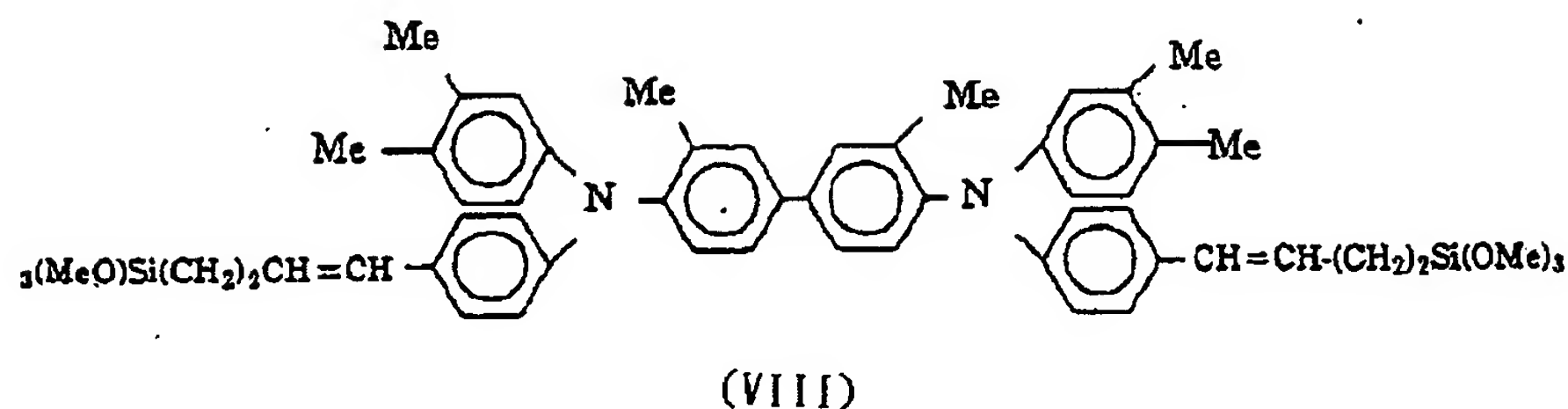
[Claim 6] The silane compound according to claim 2 characterized by what is expressed with the following structure expression (VII).

[Formula 2]



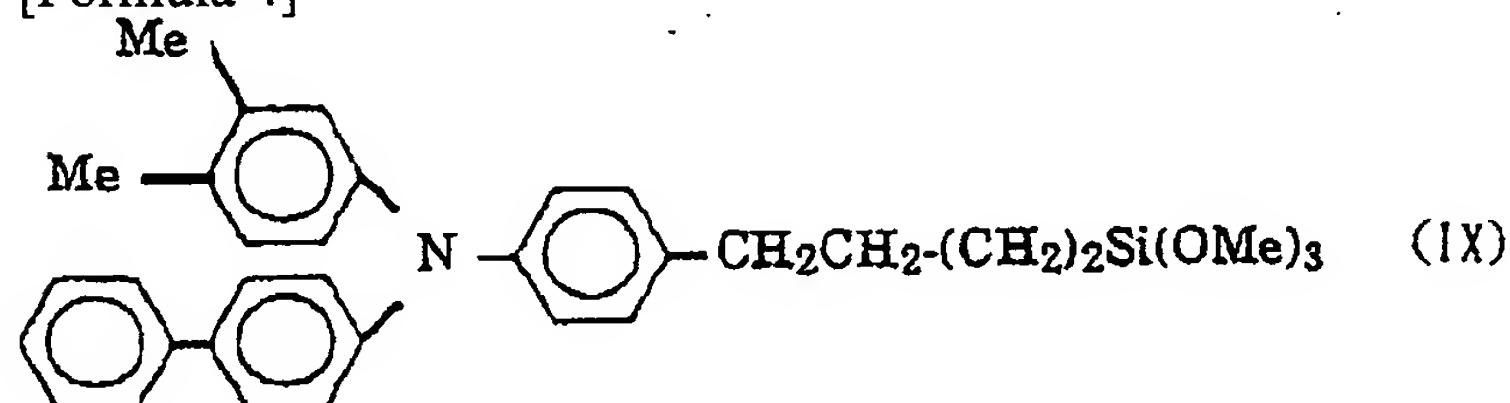
[Claim 7] The silane compound according to claim 2 characterized by what is expressed with the following structure expression (VIII).

[Formula 3]



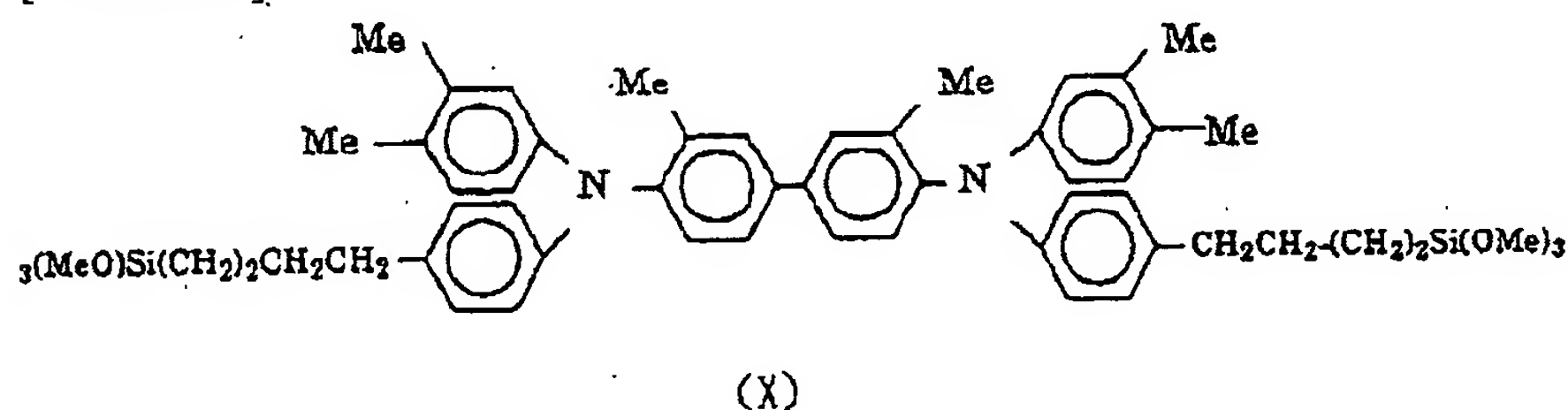
[Claim 8] The silane compound according to claim 3 characterized by what is expressed with the following structure expression (IX).

[Formula 4]



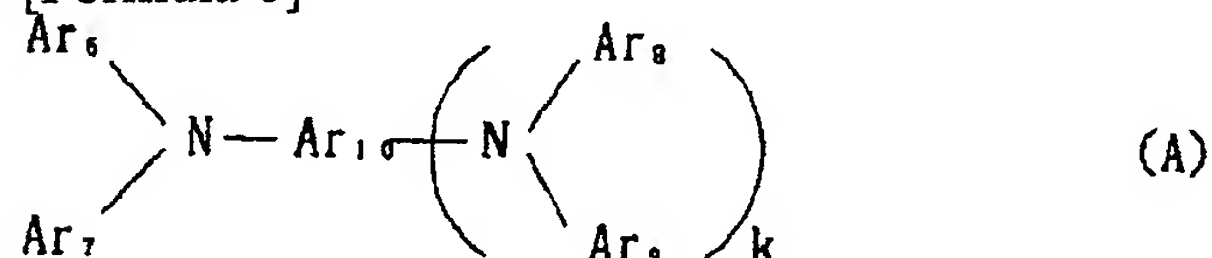
[Claim 9] The silane compound according to claim 3 characterized by what is expressed with the following structure expression (X).

[Formula 5]



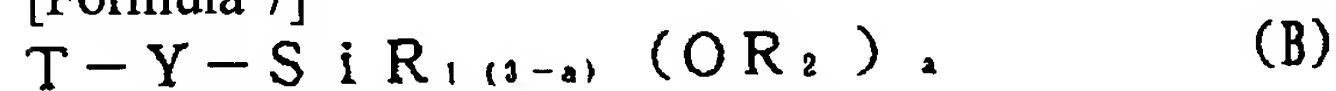
[Claim 10] The manufacture method of a silane compound of manufacturing a silane compound according to claim 2 by making the following general formula (A) and the following general formula (B) reacting using a base.

[Formula 6]



Ar6 -Ar9 shows independently the aryl group which is not replaced [ substitution or ] among [formula, respectively. Ar10 shows the aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ]. among Ar6-Ar10 1-4 pieces - It is Replaced by CHO or -CH2 L, K Shows 0 or 1, and L is PM (R3)2. Or Hal-P(R3)3+ It is Shown, Hal Shows Halogen Atom, M Shows O or S, and it is R3.] Which Shows Alkyl Group, Phenyl Group, Alkoxy Group, and Amino Group

[Formula 7]



R1 shows among [formula the aryl group which is not replaced [ hydrogen, an alkyl group, substitution, or ]. R2 Hydrogen, an alkyl group, or a trialkylsilyl group is shown, and a shows the integer of 1-3. When Y shows a divalent basis, as for T, the general formula (A) has -CHO, -CH2 L is shown and the general formula (A) has -CH2 L - CHO is shown. L is PM (R3)2. Or Hal-P(R3)3+ It is shown, Hal shows a halogen atom, M shows O or S, and it is R3.] which shows an alkyl group, a phenyl group, an alkoxy group, and the amino group

[Claim 11] The manufacture method of the silane compound according to claim 10 characterized by for the aforementioned general formula (A) having -CHO basis, and the aforementioned general formula (B) having -CH2 L set.

[Claim 12] The manufacture method of the silane compound characterized by adding hydrogen to a silane compound

according to claim 2, and manufacturing a silane compound according to claim 3.

[Claim 13] The manufacture method of the silane compound according to claim 12 characterized by adding hydrogen according to the catalytic reduction using the hydrogenation solid-state catalyst.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to a new silane compound and its manufacture method.

[0002]

[Description of the Prior Art] Since binder polymer, such as polyester, and low-molecular charge transportation material, such as a triaryl amine and a tetrapod aryl benzidine system compound, are generally included and the charge transporting bed of the photo conductor for electrophotography gives membrane formation nature, such low-molecular charge transportability material distributes in binder polymer.

[0003] However, since a low-molecular charge transportability material is distributed in binder polymer, when the mechanical strength of binder polymer original falls, consequently it uses as an electrophotography photo conductor, there is a problem of being inferior to endurance.

[0004] Although the charge transportability polymer which contains a charge transportation component in a principal chain is proposed like the polyvinyl carbazole that the above-mentioned fault should be conquered, the material of an electrical property or property sufficient in a strong field is not yet obtained.

[0005] Moreover, although applying a charge transportation material low-molecular in recent years as an organic EL element attracted attention, the low molecular weight compound dissolved by the Joule's heat generated in this case, and there was a problem of being hard to obtain the stable long element of a life.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is excellent in solubility and membrane formation nature, forms a firm film, and is to offer a various new compound applicable to an organic electron device and its various manufacture methods, such as an organic EL element and an electrophotography photo conductor.

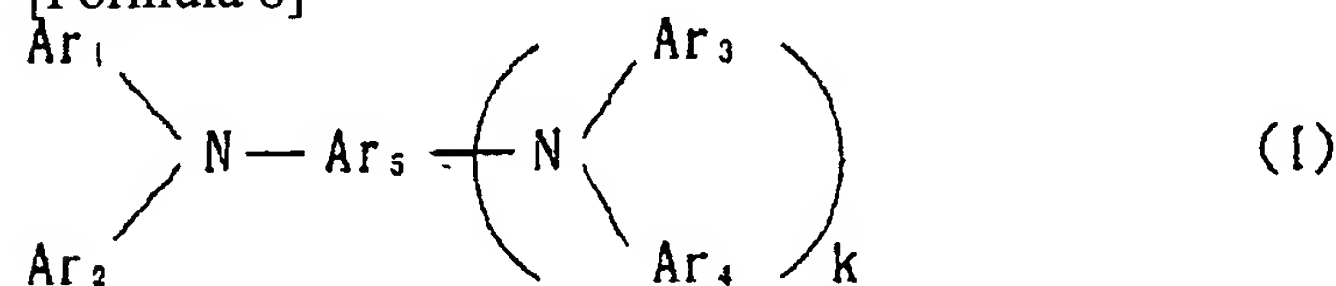
[0007]

[Means for Solving the Problem] A specific silane compound is possible for 3-dimensional bridge formation hardening, and the film is excellent in charge transportability, mechanical-proof wear nature, and environmental stability, and finds out that high endurance is shown, and this invention persons came to complete this invention, as a result of inquiring wholeheartedly to the above-mentioned technical problem.

[0008] That is, this invention is a silane compound expressed with a general formula (I).

[0009]

[Formula 8]



[0010] The inside of a formula, and Ar1 -Ar4 The aryl group which is not replaced [ substitution or ] is shown independently, respectively. Ar5 The aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ] is shown, and it is Ar1-Ar5. Inside 1-4 pieces - CH=CH-Y-SiR1(3-a) (OR2) a Or -CH2 CH2-Y-SiR1(3-a) (OR2) a It Has Substituent Shown. R1 shows the aryl group which is not replaced [ hydrogen, an alkyl group, substitution, or ], and is R2. Hydrogen, an alkyl group, or a trialkylsilyl group is shown, a shows the integer of 1-3, Y shows a divalent basis, and k shows 0 or 1.

[0011] Moreover, this invention persons examined the synthesis method of various silane compounds wholeheartedly. A method which is listed to below is learned as a synthesis method of the conventional silane compound.



1) The synthesis method this gentleman method using the hydrosilylation reaction of an alkene or an alkyne is a kind of the synthesis method which makes a silicon hydride add to a carbon-carbon unsaturated bond under various conditions, and makes an organic silicon compound generate.

[0012] In the hydrosilylation reaction of an alkene or an alkyne, the hydrosilylation reaction using the Speier reagent  $\{H_2PtCl_6 / IPA \text{ (isopropyl alcohol)}\}$  as shown in 322 etc. pages of "organic metalization study" (Shokabo Publishing Co., Ltd., 1982 publication) etc. as a catalyst is useful as a method of compounding industrially various silane compounds in which composition had eye a possible hatchet and Si-C combination with the catalyst addition of about 1xten - seven mols.

[0013] However, at such a hydrosilylation reaction, in order that the by-product by the isomer, the reduction reaction, etc. may mix, strict refining by distillation etc. is required and difficulty follows on composition of a silane compound with the high boiling point like this invention.

2) As shown in 655 etc. pages of the synthesis method "The Chemistry of Organic Silicon Compounds" (S. the volume on Patai, 1989 publication) using the Grignard reaction etc., composition of a silane compound is possible by using a Grignard reagent.

[0014] However, since a Grignard reaction produces a lot of mineral salt for oxygen, moisture, etc. very sensitively, it requires immense costs for processing being difficult and industrializing.

3) As shown in 655 etc. pages of the synthesis method "The Chemistry of Organic Silicon Compounds" (S. the volume on Patai, 1989 publication) of the amine system silane compound using the desalting acid reaction etc., composition of a silane compound is possible by the desalting acid reaction of a silane and an amine to which the halogenation machine was attached.

[0015] However, the compound obtained is restricted to a special thing, and since it has an amino group inevitably, when it uses for charge transportation material, it tends to serve as a charge trap, and it has the fault of being easy to have a bad influence on an electrical property.

4) The application to the electrophotography photo conductor of the silane compound which has the charge transportation part which uses a urethane bond for the synthesis method publication-number No. 191358 [ three to ] official report using the urethane-bond formation reaction is proposed.

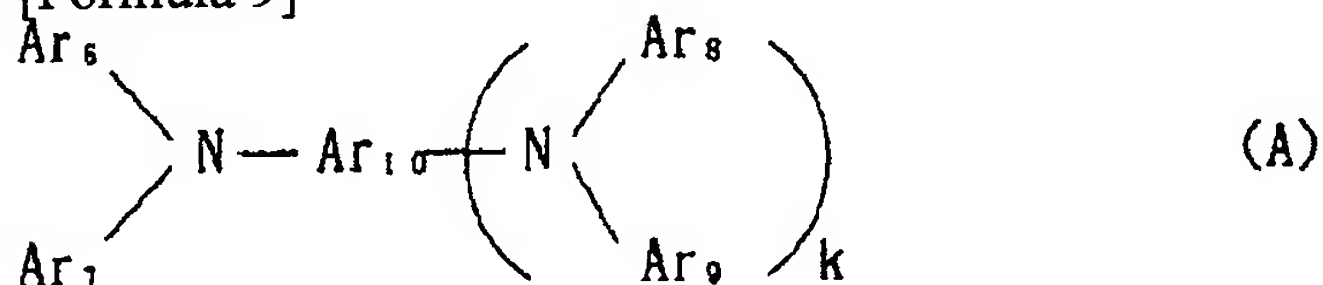
[0016] However, since the compound compounded by this method has the hydrogen atom coupled directly with the hetero atom, in case it tends to adsorb the moisture in the atmosphere and uses it as organic electron devices, such as an electrophotography photo conductor, it tends to be influenced of humidity etc. and has the fault that environmental stability is missing.

[0017] The selectivity of a reaction is high to these methods, and a wittig reaction finds out that it is easy to process and advantageous to industrialization since side reaction hardly occurs, either, and, as for this invention persons, came to complete this invention.

[0018] That is, by making the compound shown by the following general formula (A), and the compound shown by the following general formula (B) react using a base, it is expressed with a general formula (I) and this invention is Ar1 - Ar5. 1-4 pieces -  $CH=CH-Y-SiR_1(3-a)(OR_2)_a$  It is characterized by compounding the silane compound which it has.

[0019]

[Formula 9]



[0020] The inside of a formula, and Ar6 -Ar9 The aryl group which is not replaced [ substitution or ] is shown independently, respectively. Ar10 shows the aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ]. among Ar6-Ar10 1-4 pieces - It is replaced by CHO or -CH2L, k shows 0 or 1, and L is PM (R3)2. Or Hal-P(R3)3+ It is shown, Hal shows a halogen atom, M shows O or S, and it is R3. An alkyl group, a phenyl group, an alkoxy group, and the amino group are shown.

[0021]

[Formula 10]



[0022] The inside of a formula, and R1 The aryl group which is not replaced [ hydrogen, an alkyl group, substitution or ] is shown. R2 Hydrogen, an alkyl group, and a trialkylsilyl group are shown and a shows the integer of 1-3. When Y shows a divalent basis, as for T, the general formula (A) has -CHO, -CH2L is shown and the general formula (A) has

-CH<sub>2</sub> L - CHO is shown. L is PM (R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>. Or Hal-P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub>+ It is shown, Hal shows a halogen atom, M shows O or S, and it is R<sub>3</sub>. An alkyl group, a phenyl group, an alkoxy group, and the amino group are shown.

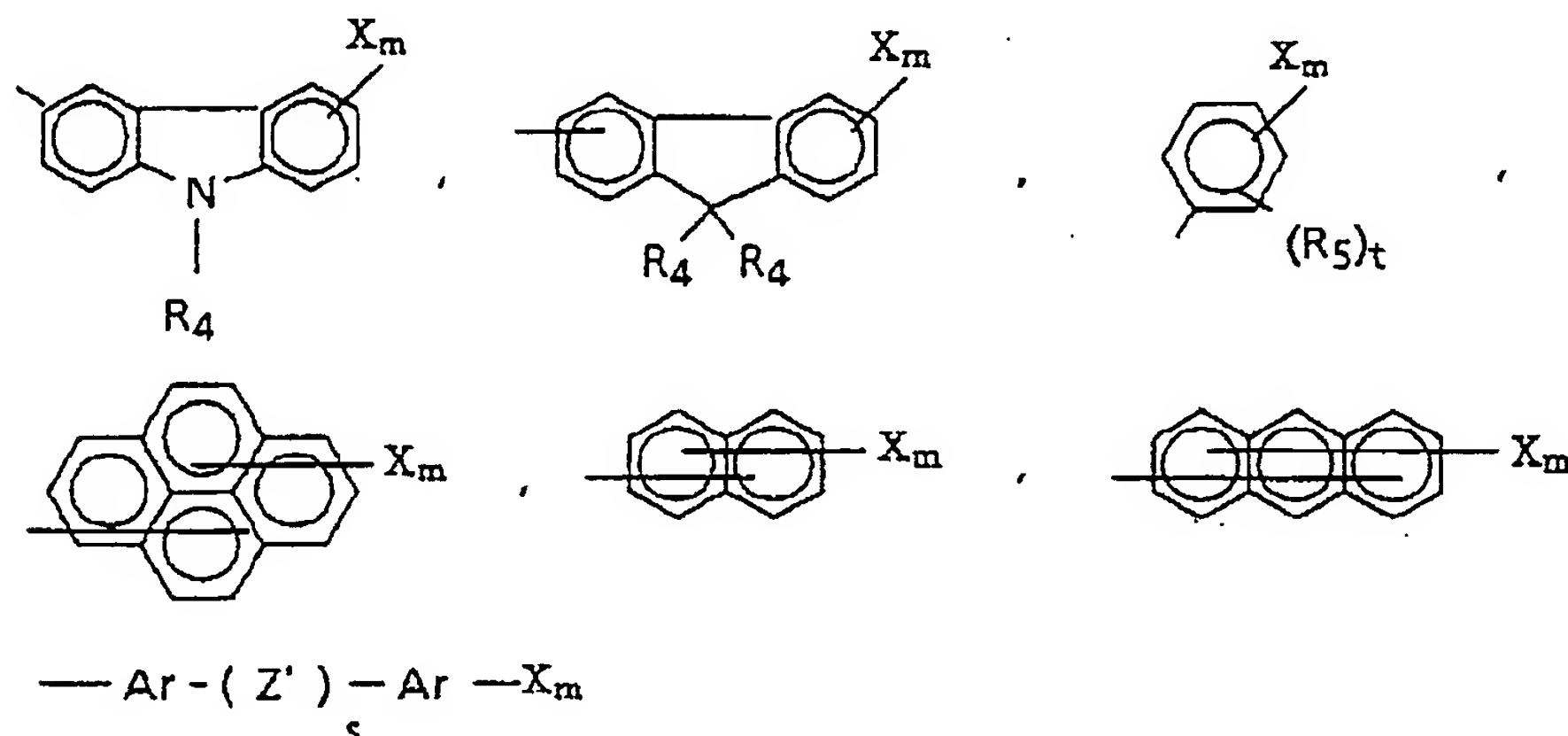
[0023]

[Embodiments of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail.

[0024] The silane compound of this invention is expressed with the aforementioned general formula (I). The inside of a formula, and Ar<sub>1</sub> - Ar<sub>4</sub> The aryl group which is not replaced [ substitution or ] is shown independently, respectively, and, specifically, the following are mentioned.

[0025]

[Formula 11]

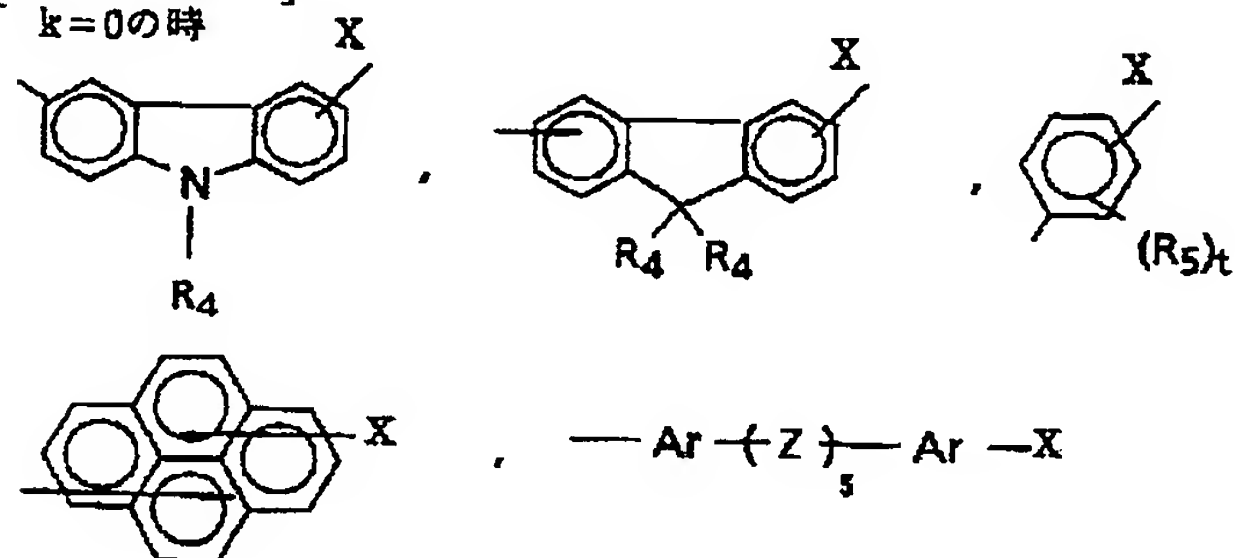


[0026] Moreover, the inside of a general formula (I) and k show 0 or 1, and are Ar<sub>5</sub>. The aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ] is shown, and, specifically, the following are mentioned.

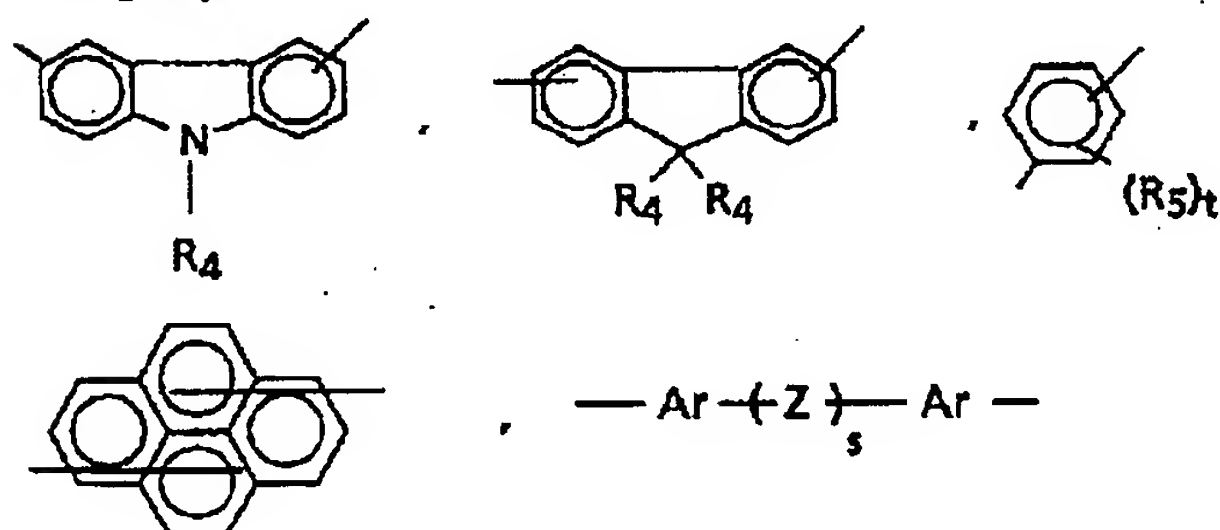
[0027]

[Formula 12]

k=0の時



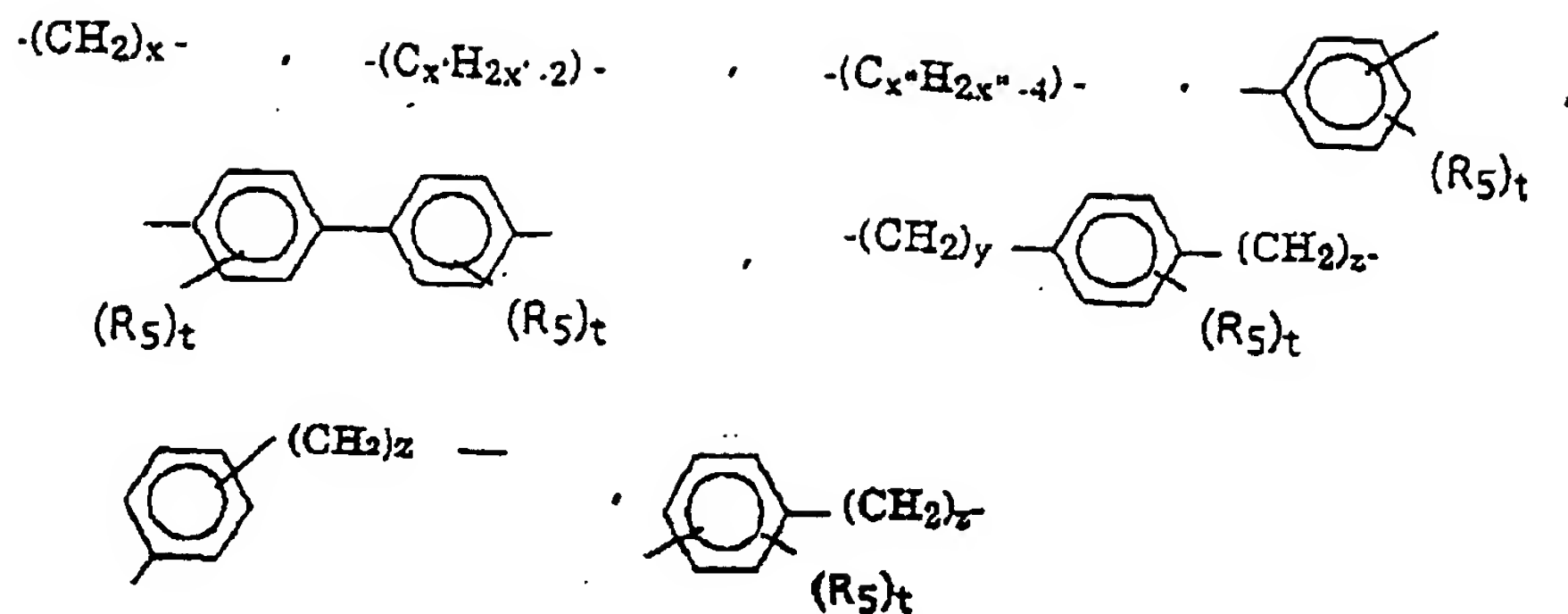
k=1の時



[0028] Here, X is -CH=CH-Y-SiR<sub>1</sub>(3-a) (OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub>. Or -CH<sub>2</sub> CH<sub>2</sub>-Y-SiR<sub>1</sub>(3-a) (OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub> It is shown. Y shows a divalent basis and, specifically, the following are mentioned.

[0029]

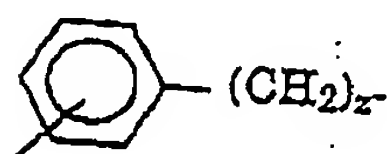
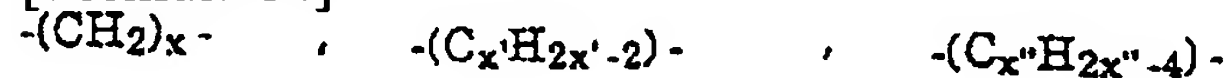
[Formula 13]



[0030] Especially in this, the following are desirable.

[0031]

[Formula 14]

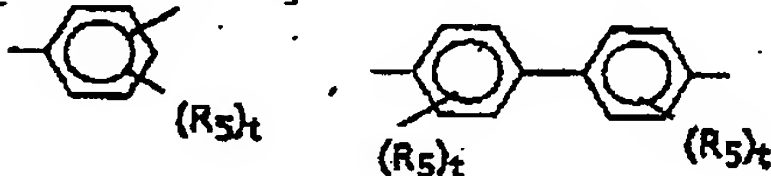


[0032] Above Ar1 -Ar5 1-4 pieces are  $-CH=CH-Y-SiR1(3-a)$  (OR2) a inside. Or  $-CH_2CH_2-Y-SiR1(3-a)$  (OR2) a It is required to have the substituent shown.

[0033] Moreover, Ar is chosen from the following bases.

[0034]

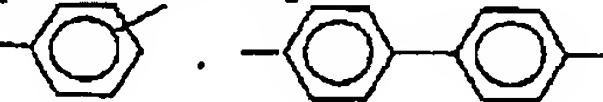
[Formula 15]



[0035] Furthermore, Z' is chosen from the following.

[0036]

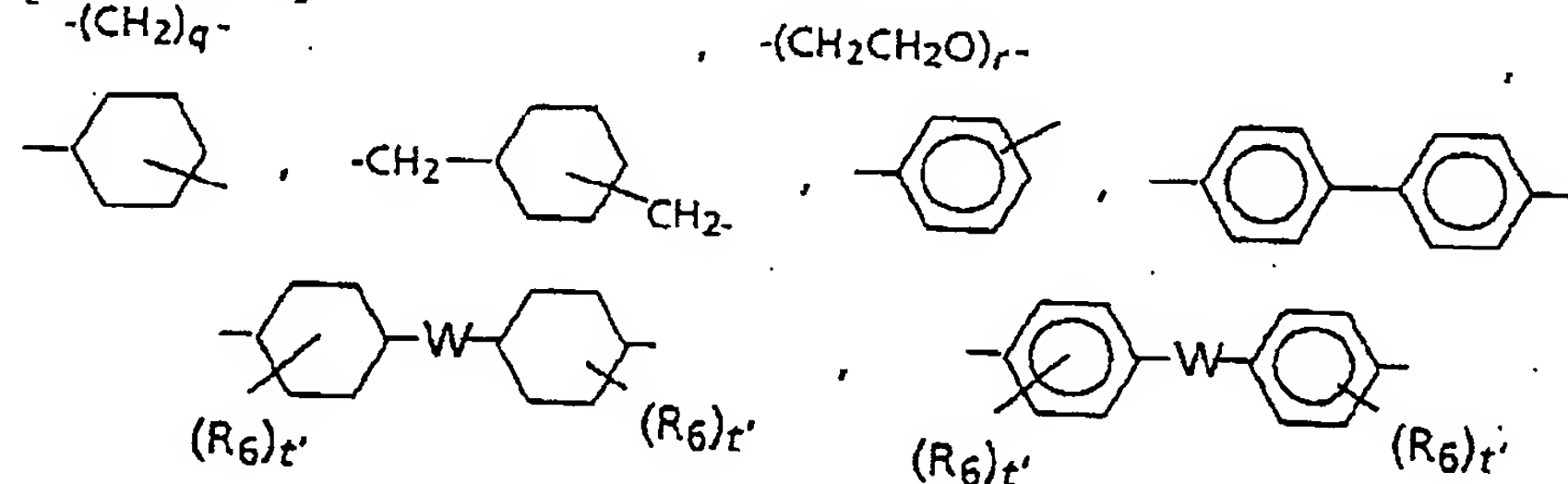
[Formula 16]



[0037] Moreover, Z is chosen from the following.

[0038]

[Formula 17]

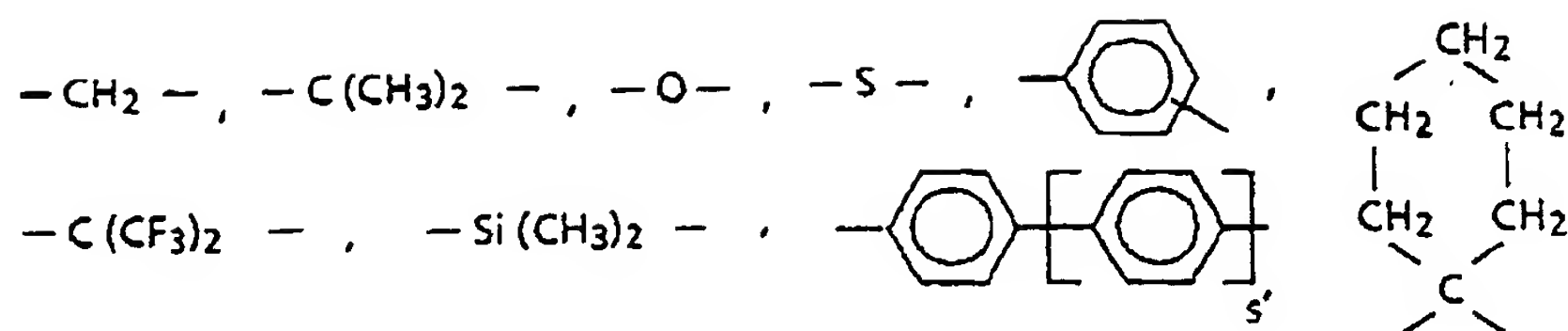


[0039] Furthermore, W is chosen from the following bases.

[0040]

[Formula 18]





[0041] Moreover, R4 It is chosen from the phenyl group which is not replaced [ the substitution replaced by hydrogen, the alkyl group of carbon numbers 1-4, the alkoxy group of carbon numbers 1-4, or ], and the aralkyl machine of carbon numbers 7-10. Furthermore, R5 It is chosen from hydrogen, the alkyl group of carbon numbers 1-4, the alkoxy group of carbon numbers 1-4, and a halogen atom. R1 The aryl group which is not replaced [ the substitution replaced by hydrogen, the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkyl group of carbon numbers 1-4, or the alkoxy group of carbon numbers 1-4 or ] is shown, and it is R2. The trialkylsilyl group replaced by hydrogen, the alkyl group of carbon numbers 1-4, and the alkyl group of carbon numbers 1-4 is shown. Moreover, R6 It is chosen from hydrogen and the alkyl group of carbon numbers 1-4. m, s, and s' shows 0 or 1, respectively, t and a show the integer of 1-3, respectively, and y and z show the integer of 1-5, respectively. Moreover, x shows the integer of 1-15 and x' and x'' show the integer of 2-15, respectively. Furthermore, t' shows the integer of 1 or 2 and q and r show the integer of 1-10, respectively.

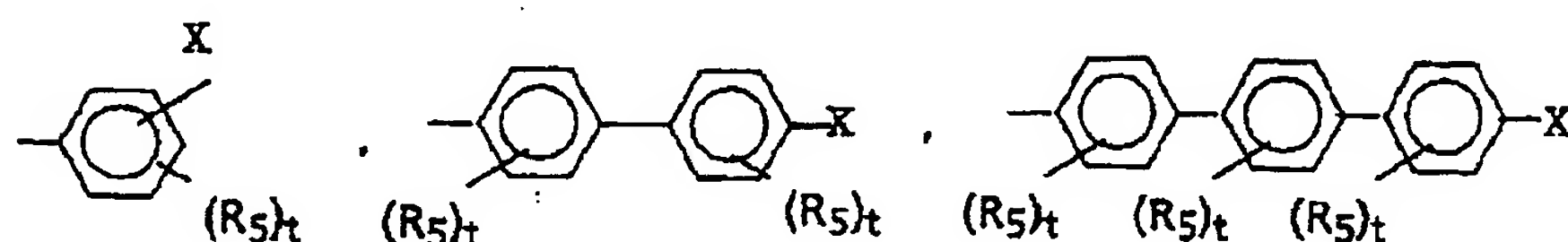
[0042] Moreover, Ar1 -Ar5 Inside, as for at least one, what has two or more conjugated aromatic series is stable to photooxidation, and desirable.

[0043] In addition, Ar5 The following are more desirable.

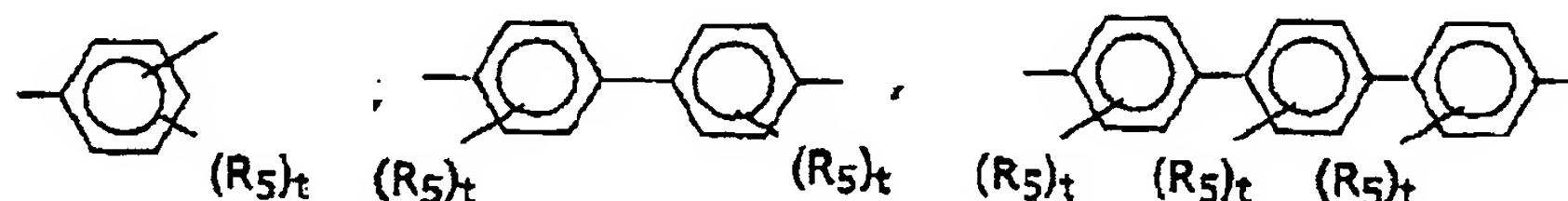
[0044]

[Formula 19]

k=0の時



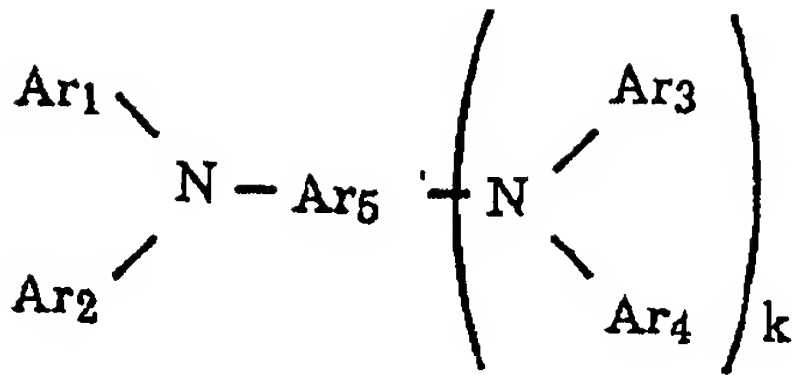
k=1の時

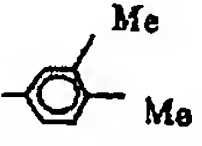


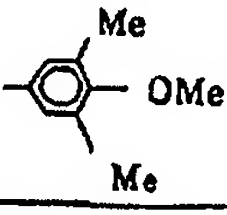


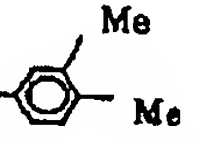

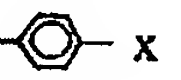
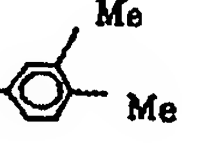
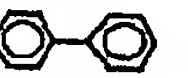

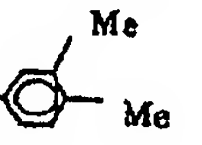
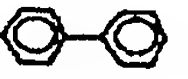



[0045] The example of the silane compound of a general formula (I) is shown in Tables 1-16.

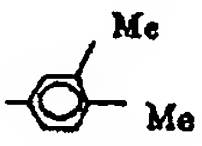


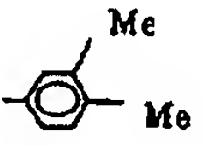
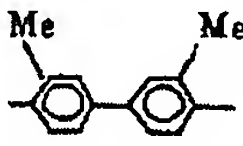
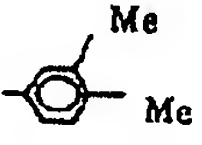


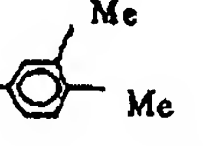

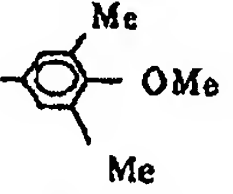


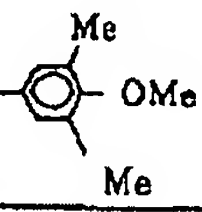
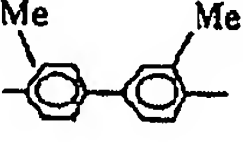
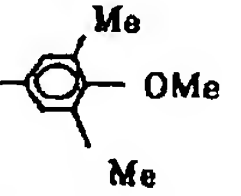


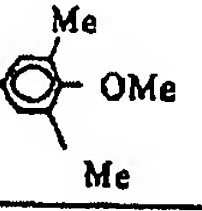





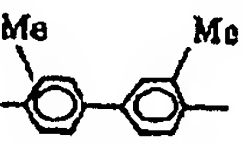
[0046]

[Table 1]



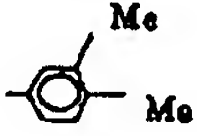


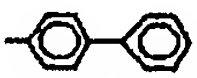
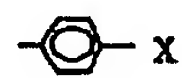
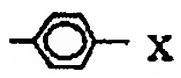
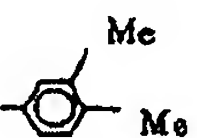
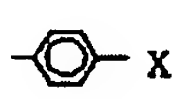
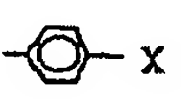
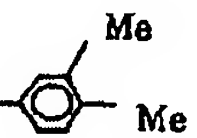
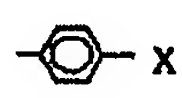
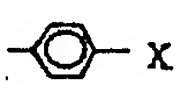



化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
1	0			—	—		-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
2	0			—	—		-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
3	0			—	—		-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OEt) <sub>3</sub>
4	0			—	—		-CH=CH-CH <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>2</sub> Me
5	0			—	—		-CH=CH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>

[0047]  
[Table 2]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6	1						-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
7	1						-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
8	1						-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
9	1						-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
10	1						-CH=CH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>

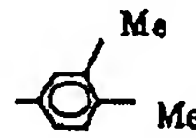

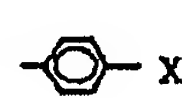
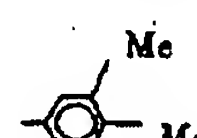
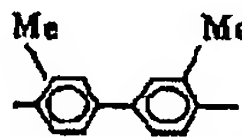
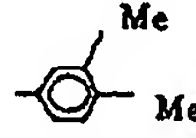
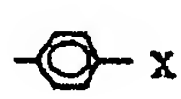
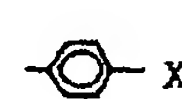


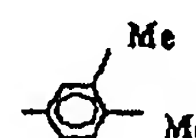
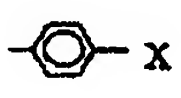
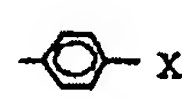
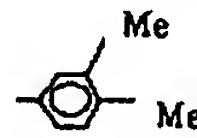
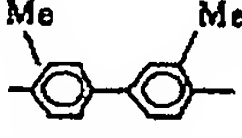
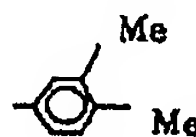

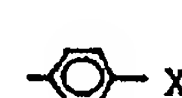
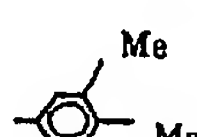
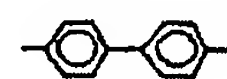
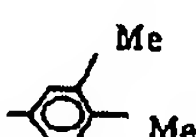
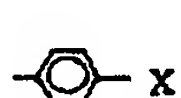

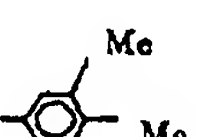

[0048]

[Table 3]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
11	0			—	—		$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
12	0			—	—		$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
13	0			—	—		$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OEt)}_3$
14	0			—	—		$\text{-CH=CH-CH}_2\text{-Si(OMe)}_2\text{Me}$
15	0			—	—		$\text{-CH=CH-C}_6\text{H}_4\text{-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$

[0049]

[Table 4]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
16	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
17	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
18	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OEt)}_3$
19	1						$\text{-CH=CH-CH}_2\text{-Si(OMe)}_2\text{Me}$
20	1						$\text{-CH=CH-C}_6\text{H}_4\text{-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$

[0050]

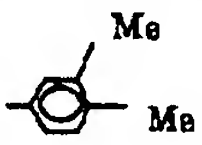


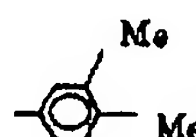
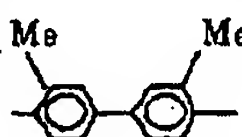
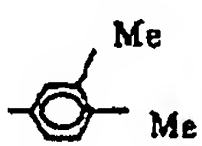

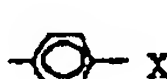
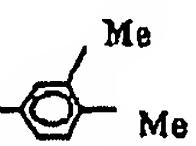

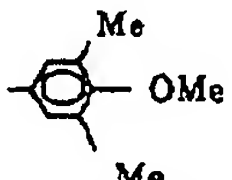


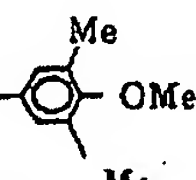

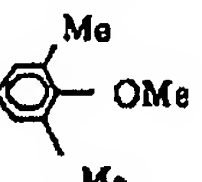


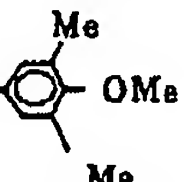
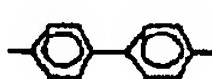
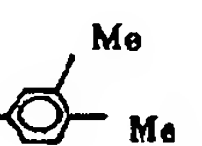

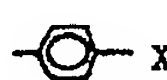
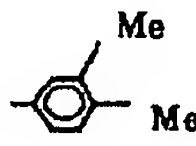
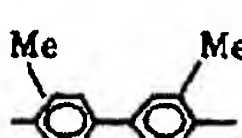
[Table 5]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
26	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
27	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
28	1						$\text{-CH=CH-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
29	1						$\text{-CH=CH-CH}_2\text{-Si(OMe)}_2\text{Me}$
30	1						$\text{-CH=CH-C}_6\text{H}_4\text{-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$

[0051]  
[Table 6]

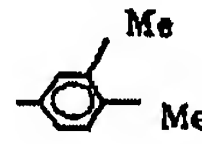

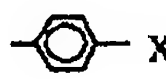
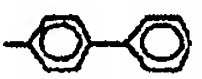

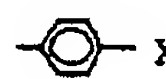
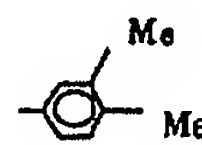


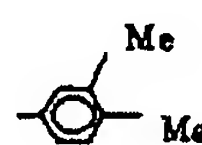
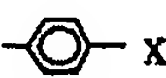

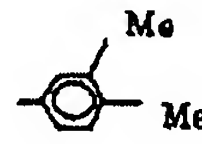


化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
3 1	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OMe)}_3$
3 2	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2\text{)}_2\text{-Si(OEt)}_3$
3 3	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-Si(OEt)}_3$
3 4	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2\text{)}_4\text{-Si(OEt)}_2\text{Me}$
3 5	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-C}_6\text{H}_4\text{-Si(OMe)}_3$

[0052]  
[Table 7]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
3 6	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
3 7	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
3 8	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
3 9	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
4 0	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$

[0053]

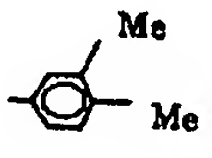

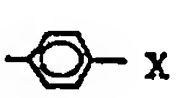
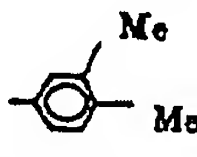
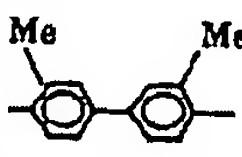
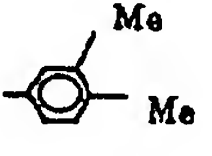


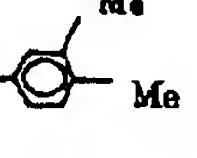
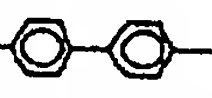
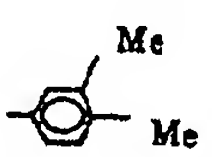
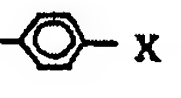
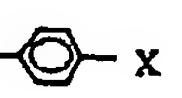
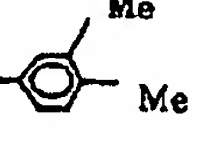
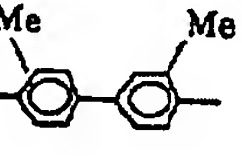
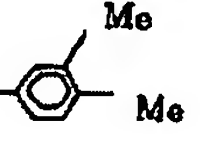
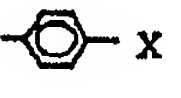
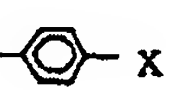
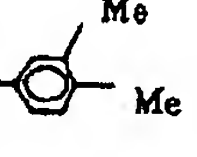
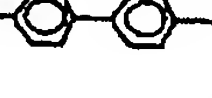
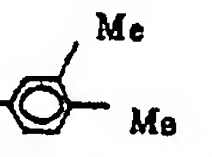
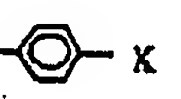
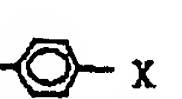
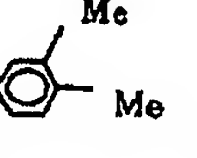
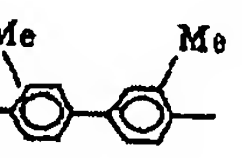
[Table 8]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
4 1	0			—	—		$-\text{CHCH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
4 2	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
4 3	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
4 4	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
4 5	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-$ $\text{Si}(\text{OMe})_3$

[0054]


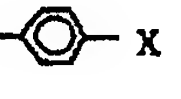
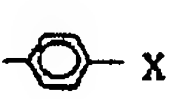
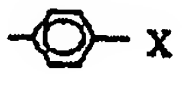
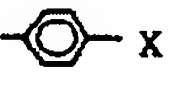
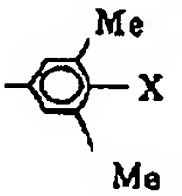
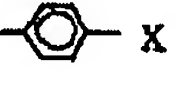
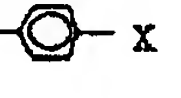
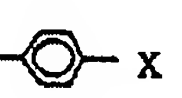




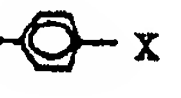
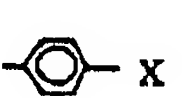
[Table 9]



化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
4 6	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
4 7	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
4 8	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
4 9	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
5 0	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4$ $\text{Si}(\text{OMe})_3$

[0055]

[Table 10]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
5 1	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
5 2	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
5 3	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
5 4	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
5 5	0			—	—		$-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4$ $\text{Si}(\text{OMe})_3$

[0056]

[Table 11]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
5 6	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
5 7	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
5 8	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
5 9	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
6 0	1						$-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{C}_6\text{H}_4$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$

[0057]

[Table 12]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 1	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CHSi}(\text{OEt})_3$
6 2	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CHC}_6\text{H}_4$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
6 3	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CHCH}_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$

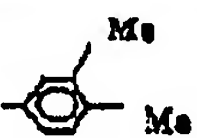
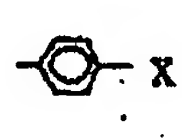
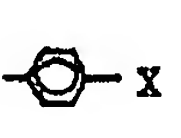
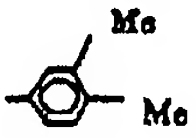
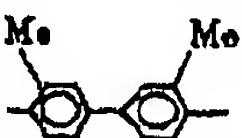
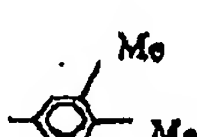
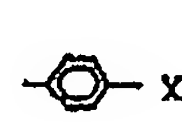
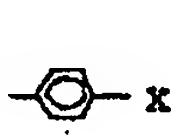
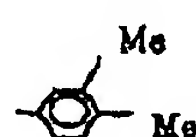

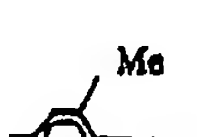
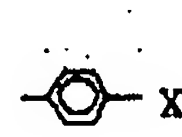
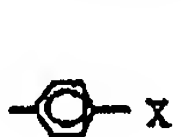
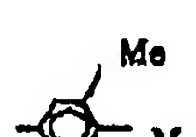

[0058]

[Table 13]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 4	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CHSi}(\text{OEt})_3$
6 5	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CHC}_6\text{H}_4$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$

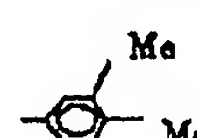
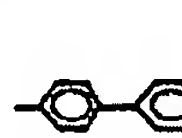
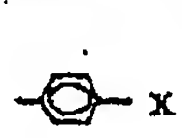
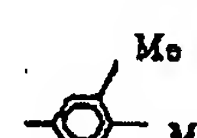
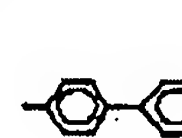
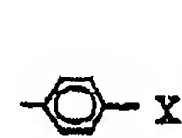
[0059]

[Table 14]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 6	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{Si}(\text{OEt})_3$
6 7	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{Si}(\text{OMe})_3$
6 8	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-\text{Si}(\text{OEt})_3$

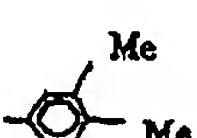
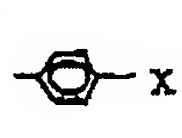
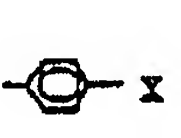
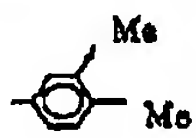
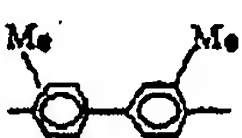

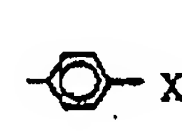
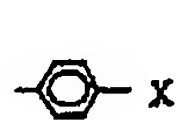
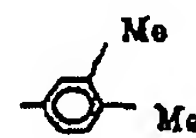
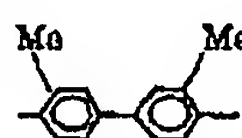

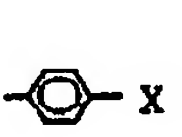
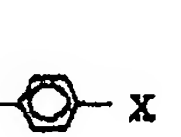
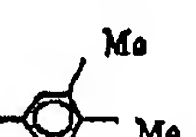
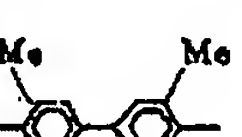
[0060]

[Table 15]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 9	0			—	—		$-(\text{CH}_2)_2-\text{C}_6\text{H}_4-(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$
7 0	0			—	—		$-(\text{CH}_2)_3-\text{Si}(\text{OEt})_3$

[0061]

[Table 16]

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
7 1	1						$-(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OEt})_3$
7 2	1						$-(\text{CH}_2)_3-\text{C}_6\text{H}_4-(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$
7 3	1						$-(\text{CH}_2)_3-\text{Si}(\text{OEt})_3$

[0062] Since what has two or more substituents containing silicon can obtain a film with a high degree of hardness when making the surface-protection layer of the photo conductor for electrophotography use and harden the silane compound of this invention, it is desirable.

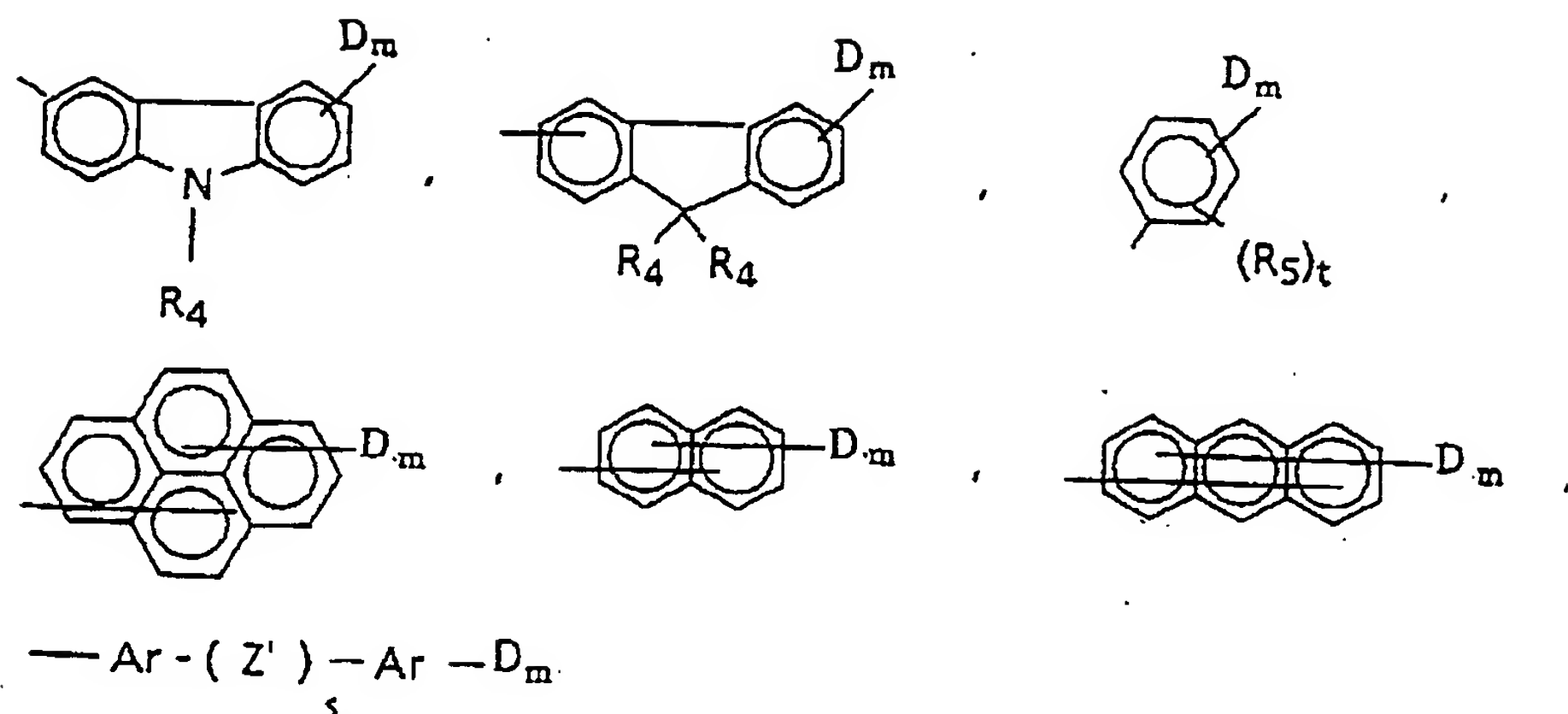
[0063] It is expressed with a general formula (I) and is Ar<sub>1</sub> -Ar<sub>5</sub>. 1-4 pieces - CH=CH-Y-SiR<sub>1</sub>(3-a) (OR<sub>2</sub>) a The silane compound which it has is compoundable by making the compound expressed with the aforementioned general formula (A), and the compound expressed with the aforementioned general formula (B) react under inert gas using a base.

[0064] Among a general formula (A) and (B), about the substituent of a general formula (I), the same substituent as a numeric value, and a numeric value, the same sign is attached and explanation is omitted.

[0065] The inside of a general formula (A), and Ar<sub>6</sub> -Ar<sub>9</sub> The aryl group which is not replaced [ substitution or ] is shown independently, respectively, and, specifically, the following are mentioned.

[0066]

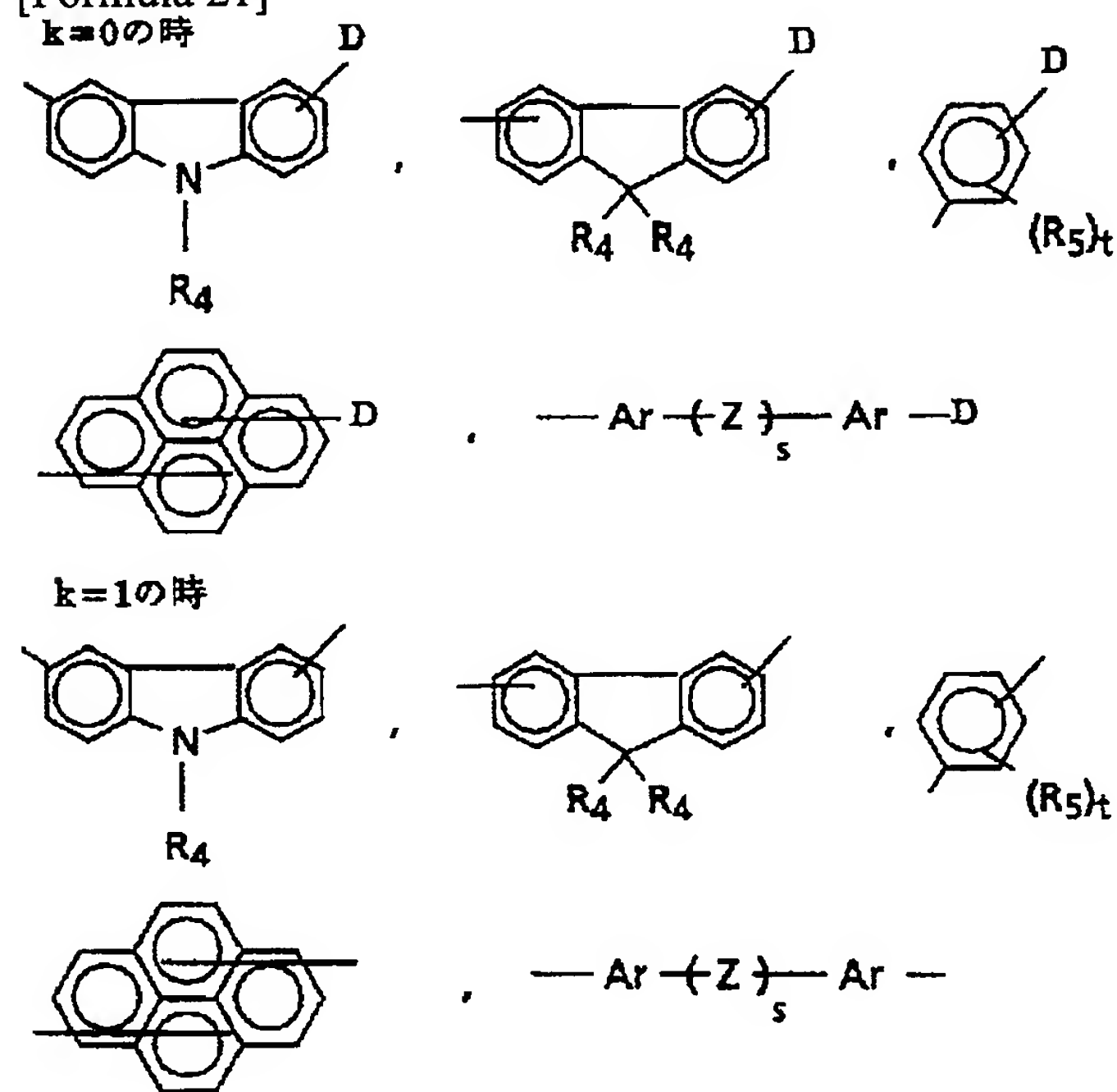
[Formula 20]



[0067] Moreover, among a general formula (A), Ar10 shows the aryl group or arylene machine which is not replaced [ substitution or ], and, specifically, the following are mentioned.

[0068]

[Formula 21]



[0069] Here, D shows -CHO or -CH<sub>2</sub> L. L is PM (R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>. Or Hal-P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub>+ It is shown, Hal shows a halogen atom and M shows O or S. Moreover, R<sub>3</sub> The alkyl group of carbon numbers 1-4, a phenyl group, the alkoxy group of carbon numbers 1-4, and the amino group are shown.

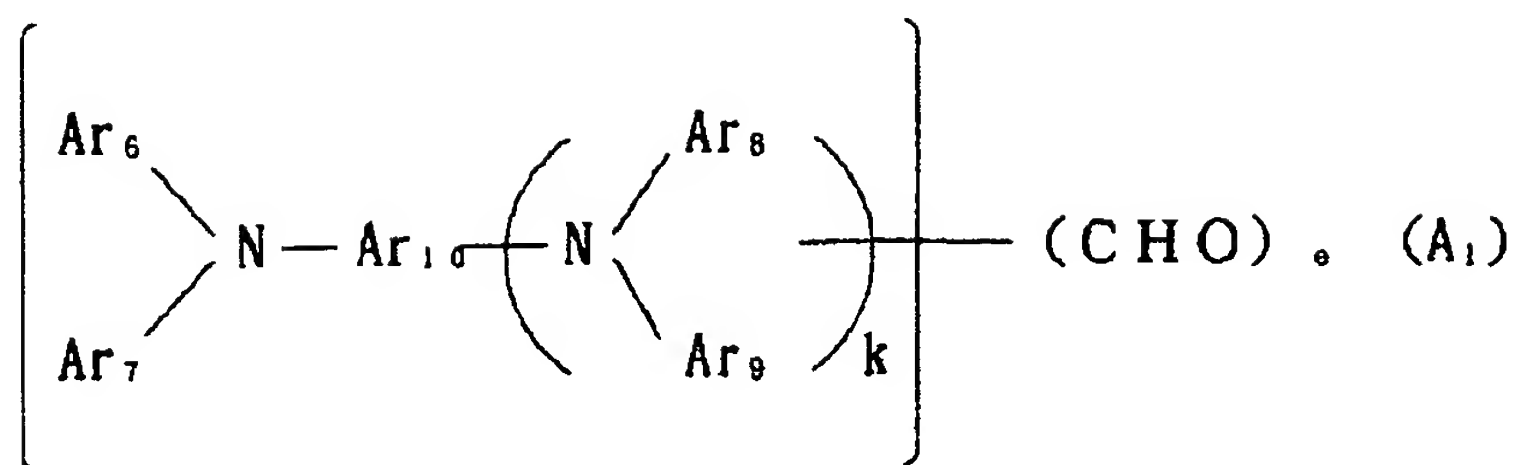
[0070] Above-mentioned 1-4 in Ar<sub>6</sub> -Ar<sub>10</sub> need to have the substituent shown by -CHO or -CH<sub>2</sub> L.

[0071] moreover, among a general formula (B), T shows -CH<sub>2</sub> L, when the general formula (A) has -CHO, and when the general formula (A) has -CH<sub>2</sub> L, it shows -CHO

[0072] {the general formula (B1)} in which a general formula (A) has -CHO basis (formyl machine), and {a general formula (A1)} and a general formula (B) have -CH<sub>2</sub> L set (phosphorus-compounds machine) when a composite ease is taken into consideration -- things are desirable

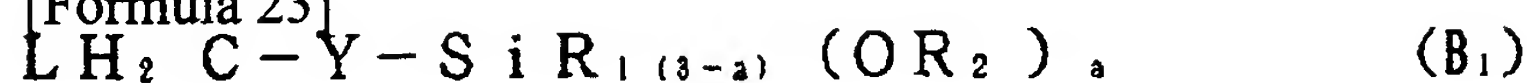
[0073]

[Formula 22]



[0074]

[Formula 23]



[0075] e shows the integer of 1-4 among a general formula (A1). The alkali used for composition can be chosen from a sodium hydroxide, a sodium carbonate, a sodium methoxide, a sodium ethoxide, a pyridine, a triethylamine, n-butyl lithium, a phenyl lithium, a sodium hydride, etc. as arbitration. Especially, when the stability over the base of the silane compound of this invention is taken into consideration, especially a sodium hydride is desirable. Moreover, although the amount of the alkali used can be arbitrarily set up according to the kind and reaction rate of phosphonium salt, since processing, separation, etc. will become difficult if the amount used increases, ten mols are preferably used from 1 by one to 1.5 mols to one mol of phosphonium salt.

[0076] Moreover, a reaction solvent can be used in composition, such a reaction solvent can be chosen from ethanol, chloroform, a dichloromethane, a nitromethane, dimethyl sulfoxide, diethylether, N.N-dimethylformamide, a tetrahydrofuran, a pentane, benzene, a xylene, etc. as arbitration, and those mixed solvents can also be further used for it. In addition, as for a solvent, dehydrating and using is desirable. In these, especially non-aquosity polar solvents, such as N.N-dimethylformamide from the height of stereoselectivity, the ease of separation after a reaction, etc. and dimethyl sulfoxide, are desirable.

[0077] Moreover, as for reaction temperature, it is desirable that it is -30-80 degrees C, it is more desirable that it is -30-25 degrees C, and it is still more desirable that it is -10-5 degrees C.

[0078] As a precursor for obtaining the phosphorus compounds used for the aforementioned composition, triphenyl phosphine, a TORIETOKISHI phosphine, a chlorodiphenyl phosphine, a chloro diethoxy phosphine, etc. are mentioned.

[0079] It is Hal-CH<sub>2</sub>-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub> about these precursors. It can use and can compound by the Wittig method of a publication to "the comprehensive organic combination experiment II" (S. a translation, 532 pages, Morikita Shuppan Co., Ltd., such as work, such as HYUNIHHI, and Yujiro etc. Nomura), the "experimental science lecture 19 (organic synthesis I)" (57 pages, Maruzen publication), etc.

[0080] Thus, it is expressed with the compounded general formula (I), and is Ar<sub>1</sub>-Ar<sub>5</sub>. 1-4 pieces - CH=CH-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub> The silane compound which it has It is expressed with a general formula (I) and is Ar<sub>1</sub>-Ar<sub>5</sub>. 1-4 pieces are -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub>. As a reduction reaction returned to the silane compound which it has RaneyNi, Reduction nickel, and the support reduction nickel (nickel/diatom earth) and PtO<sub>2</sub> (Adams catalyst), Platinum black, Support Pt (Pt/C, Pt/aluminum 2O<sub>3</sub>, etc.), support Pd (Pd/C) Pd/BaSO<sub>4</sub> and Pd/CaCO<sub>3</sub> etc. -- the reduction reaction using silane compounds, such as a catalytic-reduction reaction using hydrogenation solid-state catalysts, such as a palladium black and PdO, and a triethyl silane, a trimethyl silane, or other hydrogenation agents etc. can be used When the ease of a reaction, the lowness of cost, etc. are taken into consideration, the catalytic-reduction reaction using hydrogenation solid-state catalysts, such as RaneyNi, Support Pt, and Support Pd, is desirable.

[0081] In addition, the silane compound with little substituent which contains silicon among the silane compounds expressed with a general formula (I) is chemically more stable, and the manufacture top is advantageous.

[0082] The compound expressed with the above-mentioned general formula (I) of this invention is applicable to the interlayer of an electrophotography photo conductor, an organic EL element, a solar battery, an organic conductor, the coat material of the carrier for electrophotography, the surface treatment of charge generating material, aluminum, nickel, a Nesa glass, etc. and an organic photosensitive layer etc. For example, the compound of this invention can be used for a charge transporting bed in the electrophotography photo conductor with which the charge generating layer and the charge transporting bed were formed on conductive substrates, such as aluminum. Moreover, it can use for the surface-protection layer of the electrophotography photo conductor with which the charge generating layer, the charge transporting bed, and the surface-protection layer were formed on conductive substrates, such as aluminum. What is necessary is just to form a charge transporting bed and a surface-protection layer by more specifically applying the application liquid containing the compound of this invention. Moreover, after applying, you may make a hardening

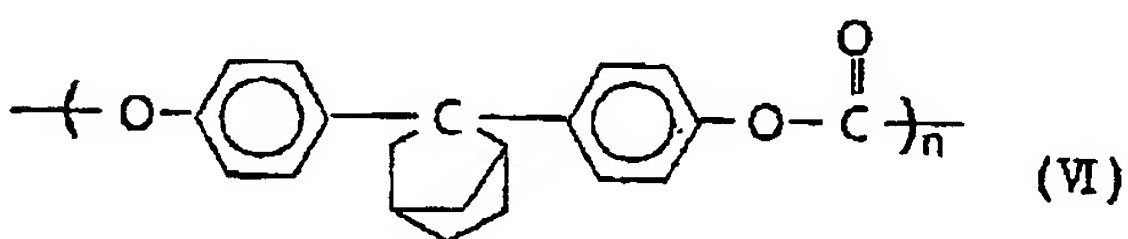
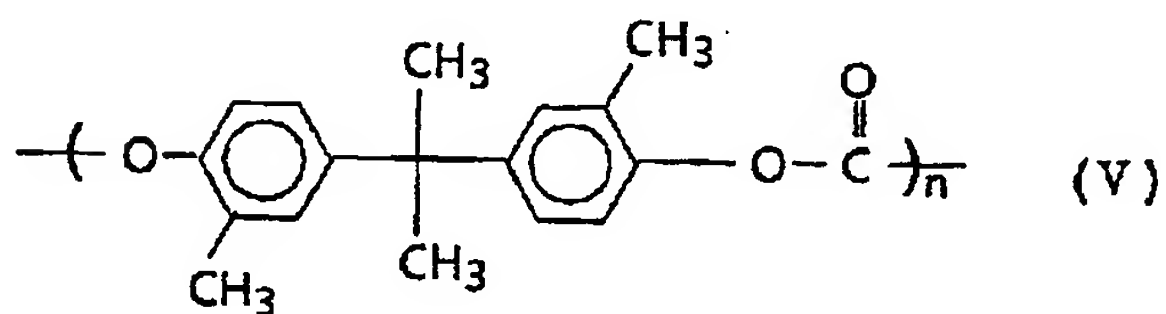
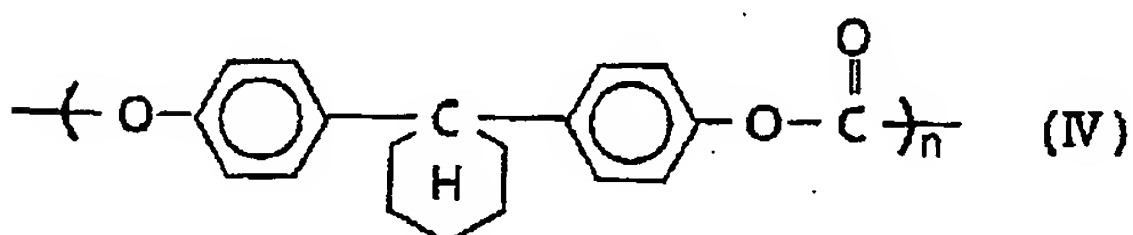
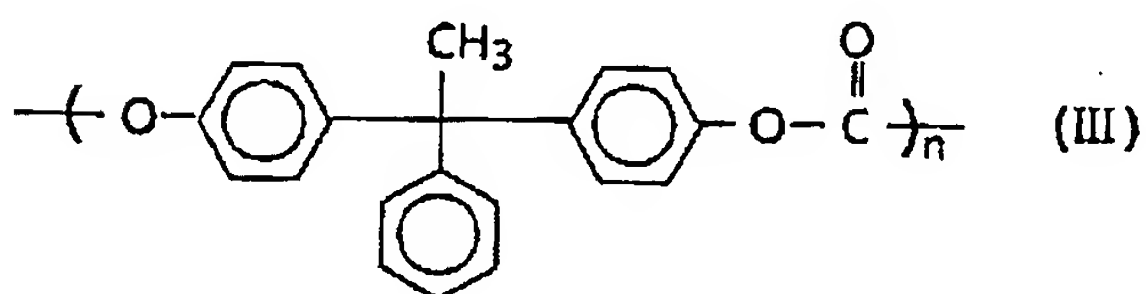
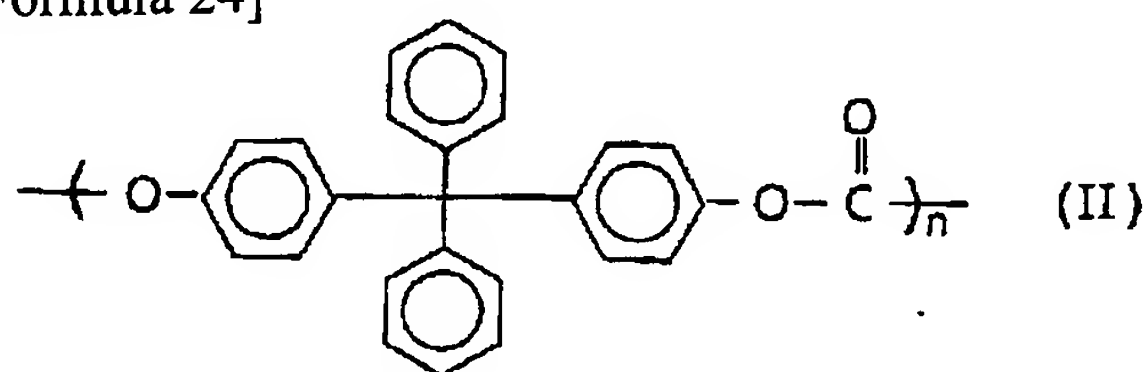


film form by using catalysts, such as heating or a phosphoric acid, a sulfuric acid, ammonia gas, an acetic acid, a hydrochloric acid, a titanate system catalyst, and an aluminum system catalyst.

[0083] In the application liquid for charge transporting beds containing the silane compound of this invention That in which the silane compound of this invention was dissolved can be used into binder polymer. as such binder polymer Polycarbonate resin, polyester resin, methacrylic resin, acrylic resin, A polyvinyl chloride resin, a polyvinylidene chloride resin, polystyrene resin, A polyvinyl-acetate resin, a styrene-butadiene copolymer, a vinylidene-chloride-acrylonitrile copolymer, A vinyl chloride vinyl acetate copolymer, a vinyl chloride-vinyl acetate-maleic-anhydride copolymer, Silicone resin, a silicone-alkyd resin, phenol-formaldehyde resin, A styrene-alkyd resin, Polly N-vinylcarbazole, polysilane, Although well-known resins, such as charge transportability polymer, such as polyester indicated by JP,64-13061,A, a 64-19049 official report, JP,8-196293,A, the 8-208820 official report, the 8-211640 official report, etc. and a polycarbonate, can be used It is not limited to these. The polycarbonate resin shown by following structure-expression (II) - (VI) from points, such as compatibility and membrane formation nature, or the polycarbonate resin to which copolymerization of them was carried out is more desirable among these binder polymer.

[0084]

[Formula 24]



[0085] Among the above-mentioned structure expression, n expresses polymerization degree and shows the integer of 50-3000. These binder polymer can be used independently, or two or more sorts can be mixed and it can be used. As for the compounding ratio (weight ratio) of the above-mentioned silane compound as a charge transportation material, and binder polymer, 10:1-1:5 are desirable.

[0086] Moreover, in the application liquid containing the silane compound of this invention, you may add various kinds of coupling agents, such as an aluminate coupling agent, a titanate system coupling agent, and a silane system coupling agent, and a commercial hard-coat agent. As an usable aluminate coupling agent, there are an acetoxymethyl aluminum JIISOPUROPI rate, aceto ethoxy aluminum JIISOPUROPIRETO, aceto propoxy aluminum JIISOPUROPIRETO, etc. Moreover, there are titanium n-butoxide, titanium ethoxide, etc. as a titanate system coupling agent. As a silane system coupling agent, furthermore, a vinyl trichlorosilane, Vinyltrimetoxysilane, vinyltriethoxysilane, gamma-glycidoxypentylmethyldietoxysilane, Gamma-glycidoxypentyltrimetoxysilane, gamma-

glycidoxy propyltriethoxysilane, gamma-aminopropyl triethoxysilane, gamma-aminopropyl trimethoxysilane, There are gamma-aminopropyl methyl dimethoxysilane, N-beta (aminoethyl) gamma-aminopropyl triethoxysilane, a tetramethoxy silane, methyl trimethoxysilane, dimethyl dimethoxysilane, etc. As a commercial hard-coat agent, moreover, KP-85 (Shin-etsu silicone company make), CR-39 (Shin-etsu silicone company make), X-12-2208 (Shin-etsu silicone company make), X-40-9740 (Shin-etsu silicone company make), X-41-1007 (Shin-etsu silicone company make), KNS-5300 (Shin-etsu silicone company make), X-40-2239 (Shin-etsu silicone company make), AY 42-440 (Dow Corning Toray Silicone make), AY 42-441 (Dow Corning Toray Silicone make), AY 49-208 (Dow Corning Toray Silicone make), etc. can be used. Furthermore, in order to reduce surface energy, it is also effective to add the compound containing a fluorine.

[0087]

[Example] Hereafter, an example explains this invention in detail.

[0088] (Synthetic example 1)

- Composition of silane compound (1) [table 1] - 3-iodine propyltrimethoxysilane 25g was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was made to dissolve in toluene 200ml. Subsequently, triphenyl phosphine 27g was added. Then, after carrying out heating reflux for 7 hours, agitating, toluene is sufficient in the crystal which deposited, the bottom solvent of washing reduced pressure was removed, and 36.5g of phosphonium salt of a white crystal was obtained. The melting point of the obtained phosphonium salt was 102.0-102.5 degrees C. Moreover, IR absorption spectrum of this phosphonium salt is shown in drawing 1 .

[0089] The 15g of the above-mentioned phosphonium salt was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was made to dissolve in anhydrous dimethylformamide 300ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 1.05g of sodium hydrides was added, and it agitated for 15 minutes. Then, agitating, N-(4-HORUMIRU phenyl)-N-(3, 4-dimethylphenyl) biphenyl-4-amine 5.1g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it agitated for 2 hours. After a reaction end and after having added methanol 10ml, having poured out reaction mixture into 3l. iced water further, extracting with toluene and removing the bottom solvent of reduced pressure, column refining (solvent : toluene) was carried out by silica gel, and silane compound (1) 6g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 2 .

[0090] (Synthetic example 2)

- Composition of silane compound (16) [table 4] - 15.9g of phosphonium salt compounded in the synthetic example 1 was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was made to dissolve in anhydrous dimethylformamide 300ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 1.5g of sodium hydrides was added, and it agitated for 15 minutes. then -- while agitating -- 3 and 3' - dimethyl-N and N' - screw (4-HORUMIRU phenyl)-N and N' -- the - screw (3, 4-dimethylphenyl) -1 and 1' -- the - biphenyl -4 and 4' - diamine 6.0g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it agitated for 2 hours After a reaction end and after having added methanol 30ml, having poured out reaction mixture into 3l. iced water further, extracting with toluene and removing the bottom solvent of reduced pressure, column refining (solvent : toluene) was carried out by silica gel, and silane compound (16) 6.9g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 3 .

[0091] (Synthetic example 3)

- Silane compound (1)6g compounded in the synthetic example 1 was put into synthetic - eggplant type flask of silane compound (31) [table 6], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 20ml and ethanol 20ml. Subsequently, Pd-C0.1g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 15 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : toluene) was carried out by silica gel, it refined further by the recrystallizing method (solvent : toluene / hexane = 1/5), and silane compound (31) 4.2g which is a transparent and colorless crystal was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 4 . Moreover, the melting point of this silane compound was 71.5-72 degrees C.

[0092] (Synthetic example 4)

- Silane compound (16) 6.3g compounded in the synthetic example 2 was put into synthetic - eggplant type flask of silane compound (46) [table 9], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 20ml and ethanol 20ml. Subsequently, Pd-C0.2g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 15 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : a hexane / ethyl-acetate = 1/1) was carried out by silica gel, and silane compound (46) 5.9g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 5 .

[0093] (Synthetic example 5)

- Composition of silane compound (62) [table 12] - Phosphorous acid triethyl 50g and phenyl (chloro methyl) trimethoxysilane 40g were put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and heating reflux was carried out at 180 degrees C for 5 hours. Superfluous phosphorous acid TORIMECHIRU was removed at the elevated temperature (185 degrees C) under reduced pressure (10mmHg) after that. Furthermore, the remaining liquid was filtered and 50.4g of colorless oily phosphorus compounds was obtained. IR absorption spectrum of the obtained phosphorus compounds is shown in [drawing 6](#) .

[0094] The 30g of the above-mentioned phosphorus compounds was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was dissolved in anhydrous dimethylformamide 300ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 3.3g of oily sodium hydrides was added, and it stirred for 15 minutes. Then, stirring, N-(4-HORUMIRU phenyl)-N-(3, 4-dimethylphenyl) biphenyl-4-amine 29.7g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it stirred for 2 hours. It was made to reprecipitate twice with a 500ml methanol after a reaction end, and silane compound (62) 19.8g of a yellow solid-state was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in [drawing 7](#) .

[0095] (Synthetic example 6)

- Silane compound (62) 10g compounded in the synthetic example 5 was put into synthetic - eggplant type flask of silane compound (35) [table 6], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 100ml and ethanol 100ml. Subsequently, Pd-C0.5g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 15 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : a hexane / ethyl-acetate = 2/1) was carried out by silica gel, and silane compound (35) 9.5g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in [drawing 8](#) .

[0096] (Synthetic example 7)

- Composition of silane compound (5) [table 1] - Phosphorous acid triethyl 20g and phenylethyl (chloro methyl) trimethoxysilane 22g were put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and heating reflux was carried out at 180 degrees C for 6 hours. Superfluous phosphorous acid TORIMECHIRU was removed at the elevated temperature (185 degrees C) under reduced pressure (10mmHg) after that. Furthermore, the remaining liquid was filtered and 26.2g of oily phosphorus compounds of light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained phosphorus compounds is shown in [drawing 9](#) .

[0097] The 9.55g of the above-mentioned phosphorus compounds was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was dissolved in anhydrous dimethylformamide 300ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 1g of oily sodium hydrides was added, and it stirred for 15 minutes. Then, stirring, N-(4-HORUMIRU phenyl)-N-(3, 4-dimethylphenyl) biphenyl-4-amine 8g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it stirred for 2 hours. It was made to reprecipitate twice with a 1500ml methanol after a reaction end, and silane compound (5)9.2g of a yellow solid-state was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in [drawing 10](#) .

[0098] (Synthetic example 8)

- Silane compound (5)5g compounded in the synthetic example 7 was put into synthetic - eggplant type flask of silane compound (69) [table 15], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 100ml and ethanol 100ml. Subsequently, Pd-C0.2g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 15 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : a hexane / ethyl-acetate = 2/1) was carried out by silica gel, and silane compound (69) 4.5g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in [drawing 11](#) .

[0099] (Synthetic example 9)

- Composition of silane compound (67) [table 14] - 25g of phosphorus compounds compounded in the synthetic example 5 was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was dissolved in anhydrous dimethylformamide 150ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 2.75g of oily sodium hydrides was added, and it stirred for 15 minutes. then -- while stirring -- 3 and 3' - dimethyl-N and N' - screw (4-formyl phenyl)-N and N' -- the - screw (3, 4-dimethylphenyl) -1 and 1' -- the - biphenyl -4 and 4' - diamine 19.6g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it stirred for 2 hours It was made to reprecipitate twice with a 1l. methanol after a reaction end, and silane compound (67) 21.1g of a yellow solid-state was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in [drawing 12](#) .

[0100] (Synthetic example 10)

- Silane compound (67) 10g compounded in the synthetic example 9 was put into synthetic - eggplant type flask of



silane compound (50) [table 9], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 100ml and ethanol 100ml.

Subsequently, Pd-C0.4g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 16 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : a hexane / ethyl-acetate = 2/1) was carried out by silica gel, and silane compound (50) 9.2g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 13 .

[0101] (Synthetic example 11)

- Composition of silane compound (20) [table 4] - 15g of phosphorus compounds compounded in the synthetic example 7 was put into the two-lot flask which carried out the nitrogen purge, and it was dissolved in anhydrous dimethylformamide 100ml. Subsequently, the system of reaction was cooled at -5 degrees C, 1.5g of sodium hydrides was added, and it stirred for 15 minutes. then -- while stirring -- 3 and 3' - dimethyl-N and N' - screw (4-formyl phenyl)-N and N' -- the - screw (3, 4-dimethylphenyl) -1 and 1' -- the - biphenyl -4 and 4' - diamine 10.9g was added, and gradually, to the room temperature, temperature was raised and it stirred for 2 hours It was made to reprecipitate twice with a 1l. methanol after a reaction end, and silane compound (20) 13.1g of a yellow solid-state was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 14 .

[0102] (Synthetic example 12)

- Silane compound (20) 10g compounded in the synthetic example 11 was put into synthetic - eggplant type flask of silane compound (72) [table 16], and it was made to dissolve in tetrahydrofuran 100ml and ethanol 100ml. Subsequently, Pd-C0.5g was added 5%, it replaced from dryness hydrogen, and the mouth of a flask was made to react at a room temperature by the state where it connected with the dryness hydrogen source of supply for 16 hours. After filtering Pd-C after the reaction end and removing a solvent by reduced pressure, column refining (solvent : a hexane / ethyl-acetate = 2/1) was carried out by silica gel, and silane compound (72) 9.1g with oily light yellow was obtained. IR absorption spectrum of the obtained silane compound is shown in drawing 15 .

[0103] (Examples 1 and 2) The photo conductor for electrophotography was manufactured as follows using the silane compound compounded in the synthetic examples 1 and 2.

[0104] (Formation of an undercoating layer) On the aluminum cylinder substrate of 30mmphi which carried out honing processing, the solution which consists of the zirconium compound (tradename : ORUGACHIKKUSU ZC540, Matsumoto Pharmaceuticals company make) 10 weight section, the silane compound (tradename : A1110, product made from Japanese YUNKA) 1 weight section, the isopropanol 40 weight section, and the butanol 20 weight section was applied by the dip coating method, stoving was carried out for 10 minutes in 150 degrees C, and the undercoating layer of 0.5 micrometers of thickness

[0105] (Formation of a charge generating layer) After having mixed with the polyvinyl-butyral-resin (tradename : id REKKU BM-S, Sekisui Chemical Co., Ltd. make) 1 weight section and the acetic-acid n-butyl 100 weight section, processing the x- type metal free phthalocyanine 1 weight section with the paint shaker with the glass bead for 1 hour and distributing, the obtained application liquid was applied by the dip coating method on the above-mentioned undercoating layer, and stoving was carried out for 10 minutes in 100 degrees C.

[0106] (Formation of a charge transporting bed) The polycarbonate resin 3 weight section shown below with the N-(4-methylphenyl)-N-(3, 4-dimethylphenyl) biphenyl-4-amine 32 weight section and the aforementioned structure expression (IV) It dissolved in the monochlorobenzene 20 weight section, the obtained application liquid was applied by the dip coating method on the aluminum substrate in which the charge generating layer was formed, and stoving and the charge transporting bed of 20 micrometers of thickness were formed in 120 degrees C for 1 hour.

[0107] (Formation of a surface-protection layer) The silane compound 3 weight section and the phenyl triethoxysilane 1 weight section which were compounded in the synthetic example 1 were further dissolved in the silicon hard-coat agent (tradename : X-40 -2239, Shin-etsu silicon company make) 6 weight section and the ethyl-acetate 5 weight section, the obtained application liquid was applied by the dip coating method on the charge transporting bed, was dried at the room temperature, and the surface-protection layer of 3 micrometers of thickness was formed.

[0108] Moreover, the silane compound compounded in the synthetic example 2 instead of the silane compound compounded in the synthetic example 1 was used, and also the photo conductor for electrophotography was manufactured like the above.

[0109] Thus, after it recorded the obtained photo conductor for electrophotography in the system (tradename : XP- 11, Fuji Xerox make) and the PPC form of B4 performed the durability test of 10,000 sheets, wear, a blemish, ablation, the crack, etc. were not seen in a photo conductor front face, but the clear picture was acquired.

[0110] (Example 3) The photo conductor for electrophotography was manufactured like the example 1 except having used the following surface-protection layer.

[0111] (Formation of a surface-protection layer) The silane compound 6 weight section compounded in the synthetic

example 3 was dissolved in the silicon hard-coat agent (tradename : X-40 -2239, Shin-etsu silicon company make) 12 weight section, the cyclohexanone 10 weight section, and the acetic-acid 2 weight section, the obtained application liquid was applied by the dip coating method on the aforementioned charge transporting bed, was dried at the room temperature, and the surface-protection layer of 3 micrometers of thickness was formed.

[0112] Thus, the obtained photo conductor for electrophotography was recorded in the system (tradename : XP- 11, Fuji Xerox make), and the PPC form of B4 performed the durability test of 10,000 sheets. A result is shown in Table 18.

[0113] (Examples 4-18) Except having used what is shown in Table 17 instead of the silane compound used in the example 3, and the silicon hard-coat agent (X-40-2239), the photo conductor for electrophotography was created like the example 3, and the durability test was performed. A result is shown in Table 18. In addition, DMS-S15 in Table 17 came to hand from Chisso Corp.

[0114]

[Table 17]

実施例	化合物No.	添加剤		
		バインダー	PhSi(OEt) <sub>3</sub>	C <sub>8</sub> F <sub>17</sub> C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> Si(OMe) <sub>3</sub>
3	(31)	X-40-2239 12部	—	—
4	(31)	X-40-2239 12部	2部	—
5	(31)	X-40-2239 12部	1部	1部
6	(31)	X-40-2239 12部	—	2部
7	(31)	DMS-S15 12部	—	—
8	(31)	DMS-S15 12部	2部	—
9	(31)	DMS-S15 12部	1部	1部
10	(31)	DMS-S15 12部	—	2部
11	(46)	X-40-2239 12部	—	—
12	(46)	X-40-2239 12部	2部	—
13	(46)	X-40-2239 12部	1部	1部
14	(46)	X-40-2239 12部	—	2部
15	(46)	DMS-S15 12部	—	—
16	(46)	DMS-S15 12部	2部	—
17	(46)	DMS-S15 12部	1部	1部
18	(46)	DMS-S15 12部	—	2部

[0115]

[Table 18]



実施例	鉛筆硬度	1万枚コピー後の状態		
		感光体の磨耗量	コピー画質	感光体表面状態
3	8H	148nm	良好	良好
4	8H	116nm	良好	良好
5	8H	96nm	良好	良好
6	7H	151nm	良好	良好
7	6H	195nm	良好	良好
8	6H	179nm	良好	良好
9	6H	171nm	良好	良好
10	6H	206nm	良好	良好
11	9H	55nm	良好	良好
12	9H	27.5nm	良好	良好
13	9H	22nm	良好	良好
14	8H	63nm	良好	良好
15	8H	69nm	良好	良好
16	8H	55nm	良好	良好
17	8H	50nm	良好	良好
18	7H	72nm	良好	良好
比較例1	1H	880nm	傷による画質 欠陥発生	若干の傷

[0116] (Example 1 of comparison) Except for having not formed a surface-protection layer, the photo conductor for electrophotography was created like the example 3, and the durability test was performed. A result is shown in Table 18.

[0117] As mentioned above, it turns out [ which the silane compound of this example was excellent in solubility and membrane formation nature, and the film was firm and was excellent ] that stability is repeatedly shown.

[0118]  
[Effect of the Invention] The silane compound of this invention is a new compound, can be excellent in solubility and membrane formation nature, can form a firm film, and can apply it to various organic electron devices, such as an organic EL element and an electrophotography photo conductor.

[0119] Moreover, the manufacture method of this invention has the high selectivity of a reaction, and since side reaction hardly occurs, either, it can manufacture the above-mentioned silane compound efficiently.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

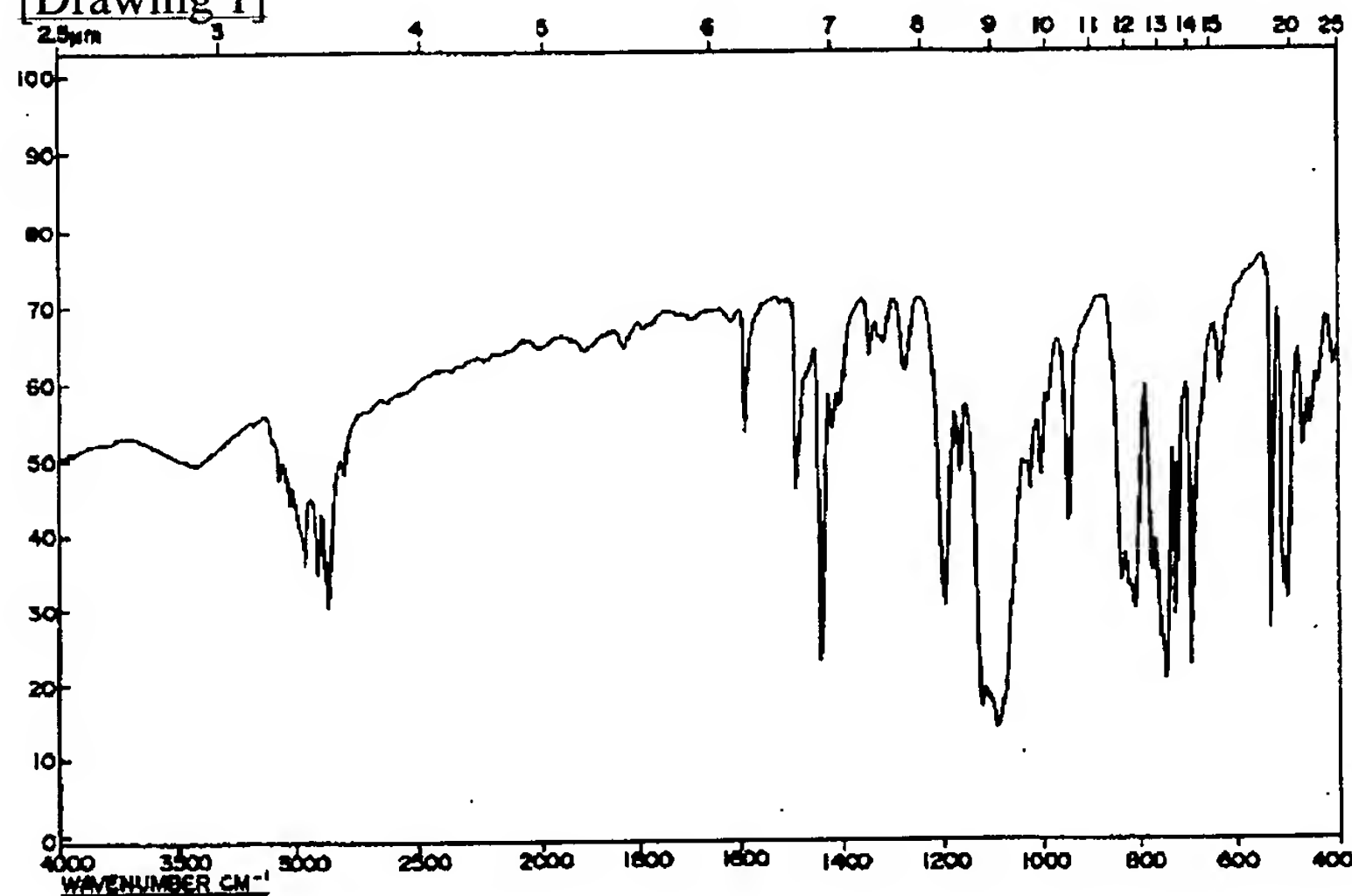
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

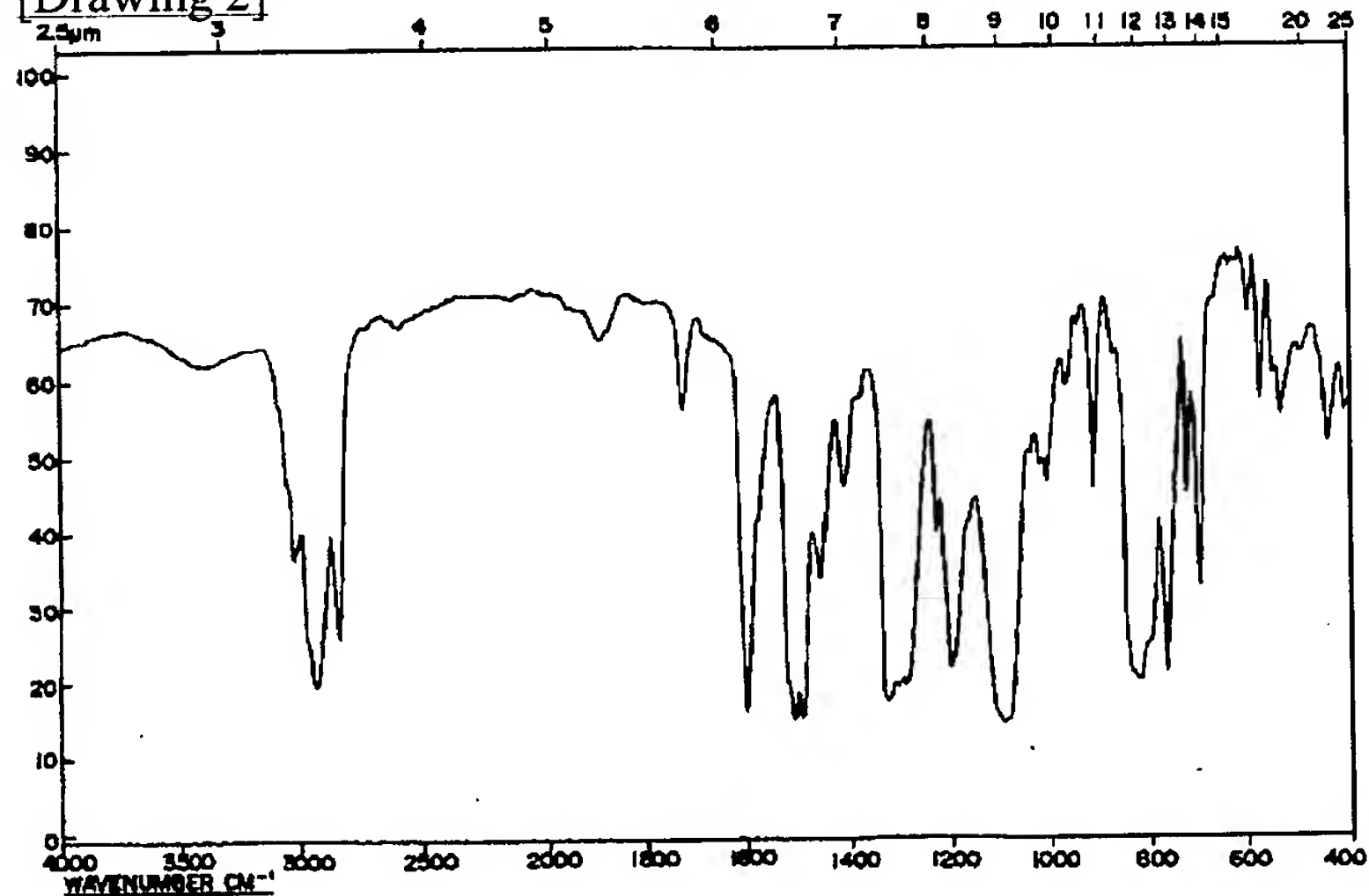
DRAWINGS

---

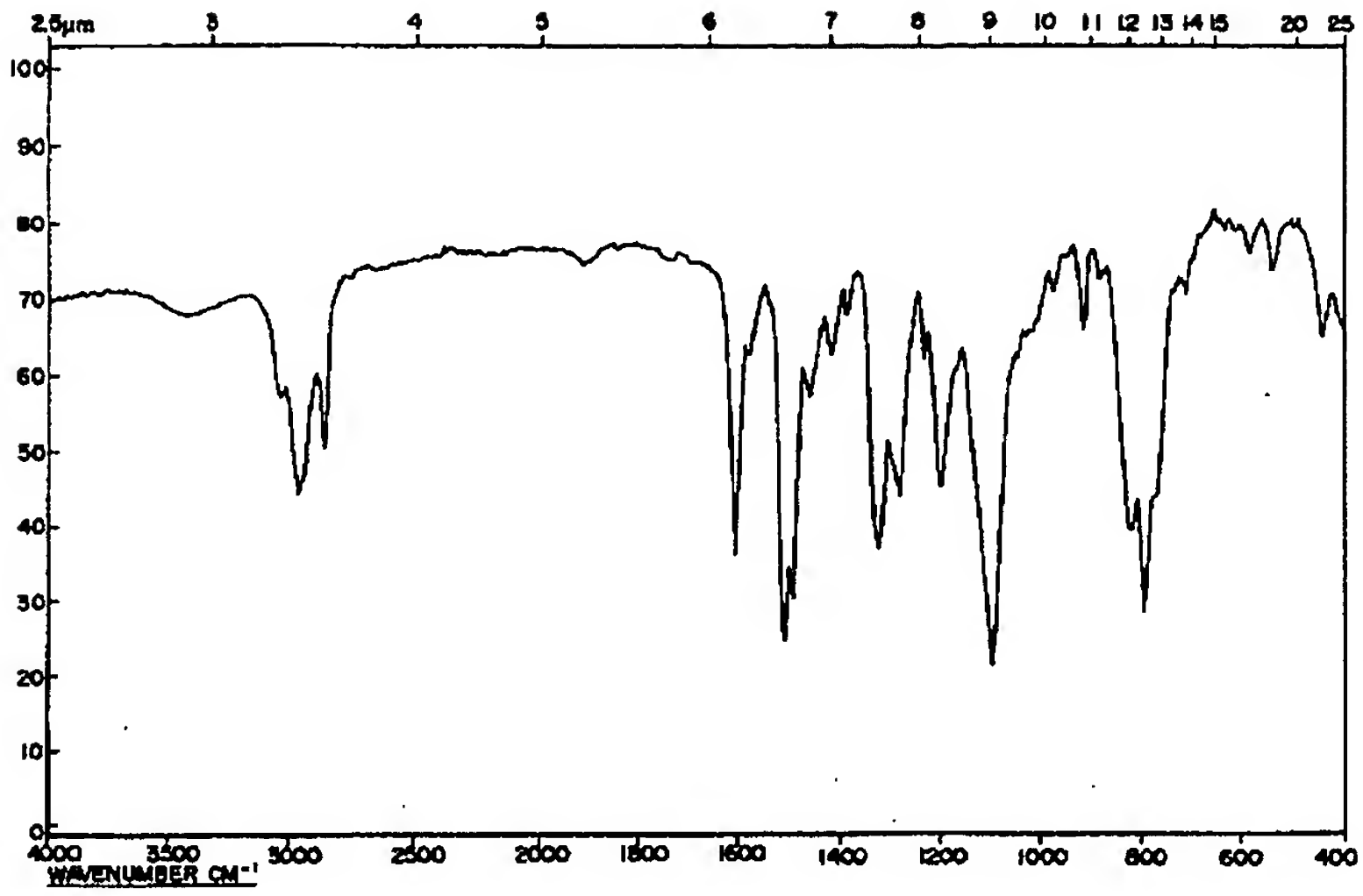
[Drawing 1]



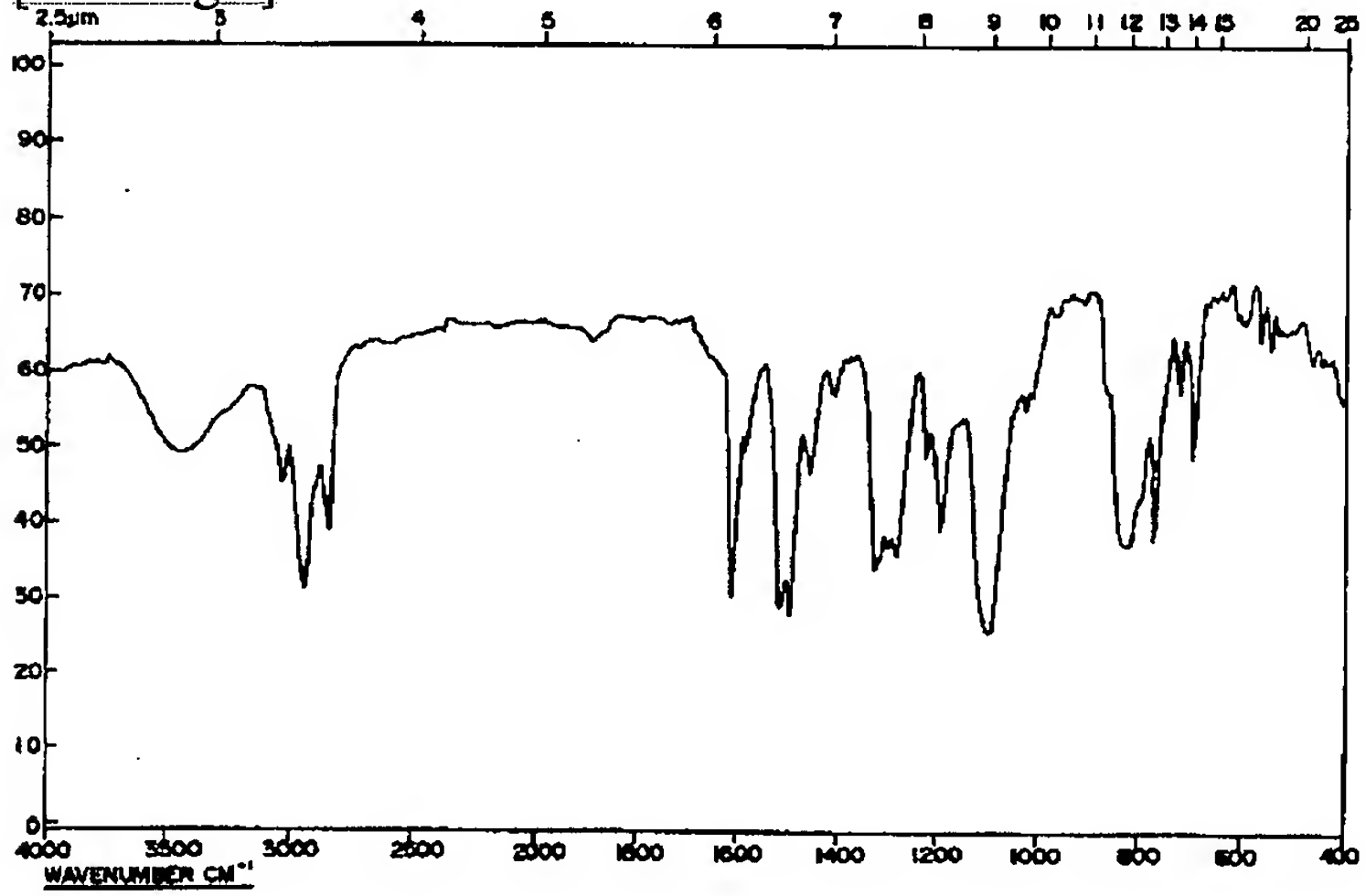
[Drawing 2]



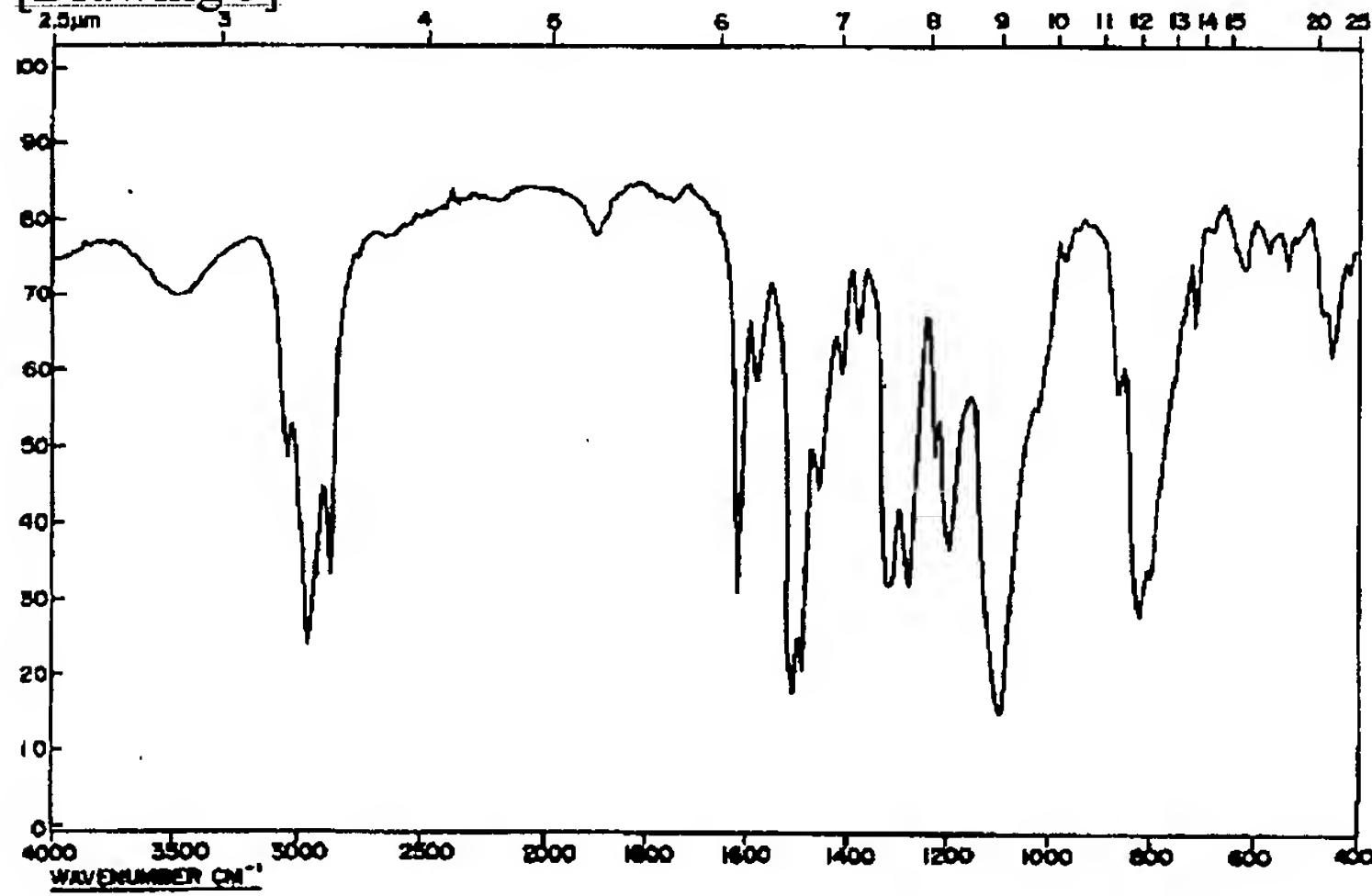
[Drawing 3]



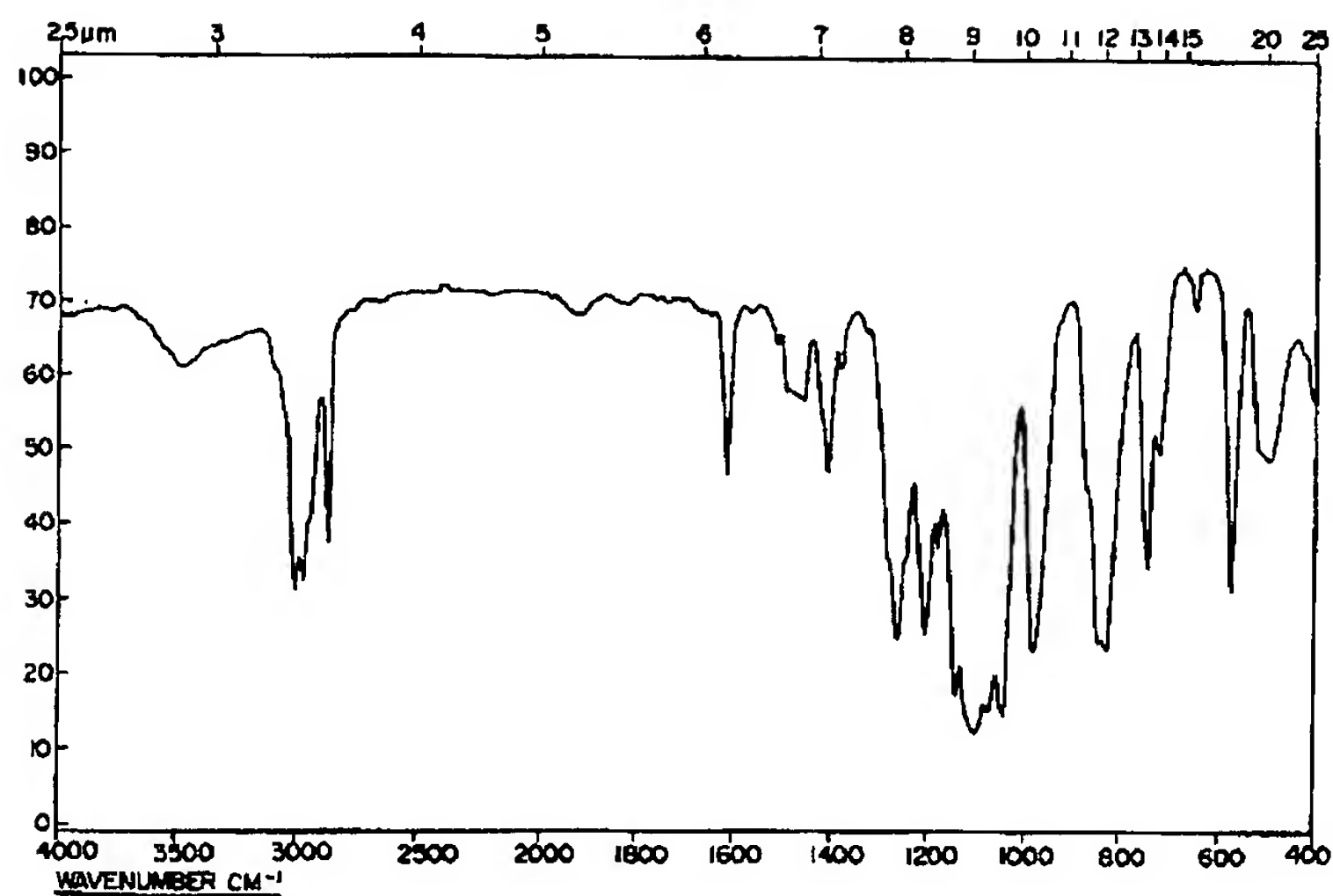
[Drawing 4]



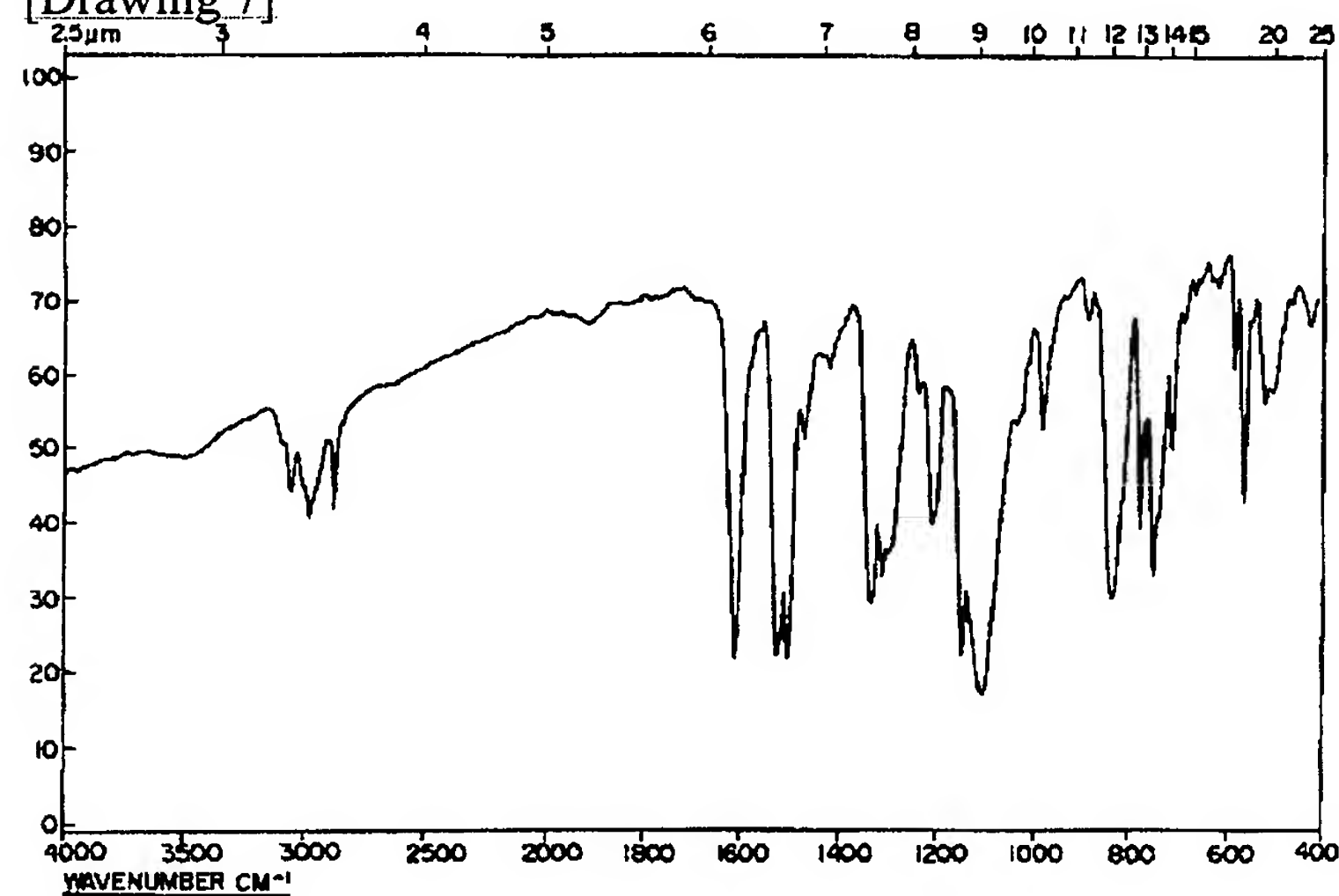
[Drawing 5]



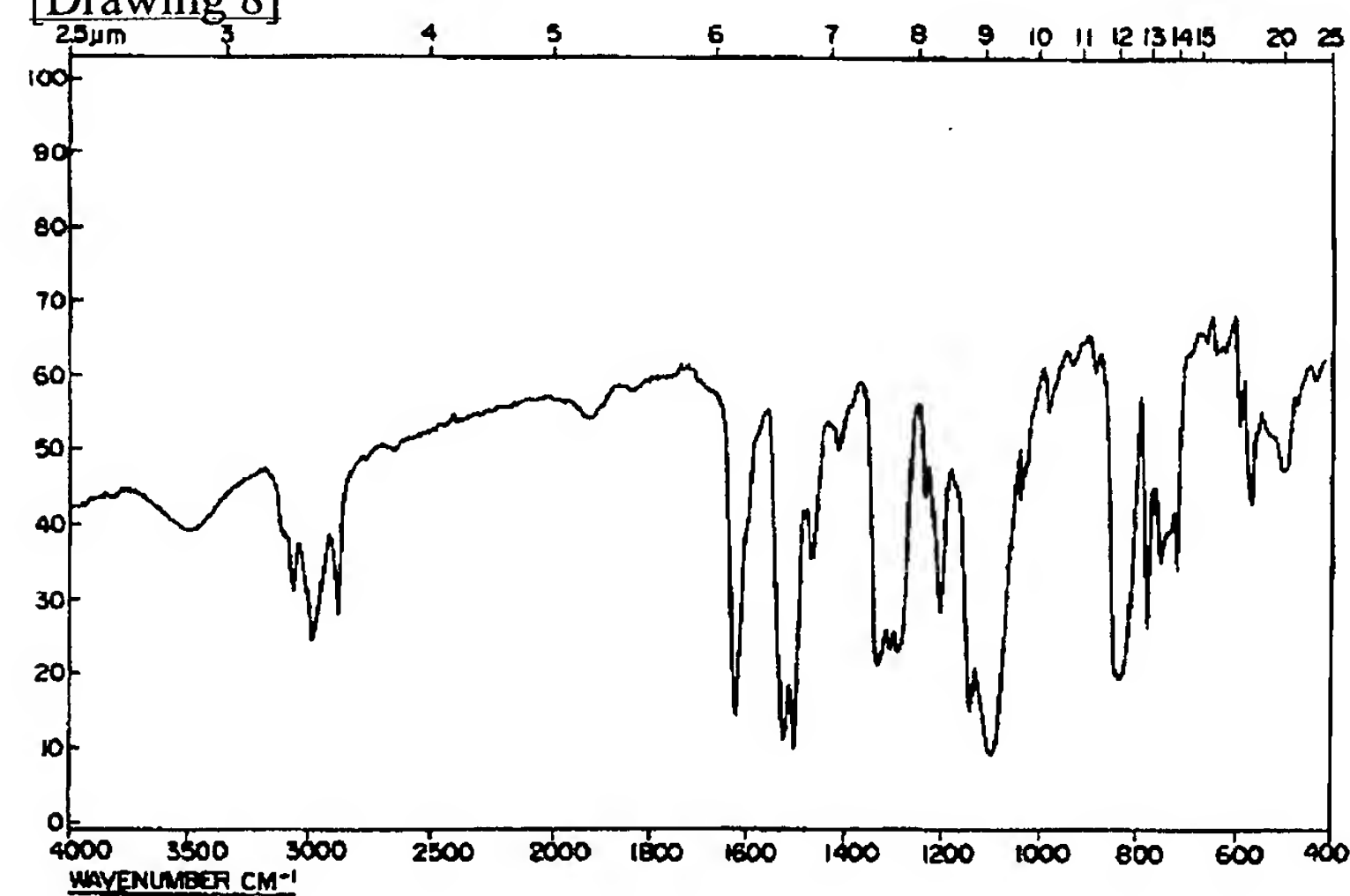
[Drawing 6]



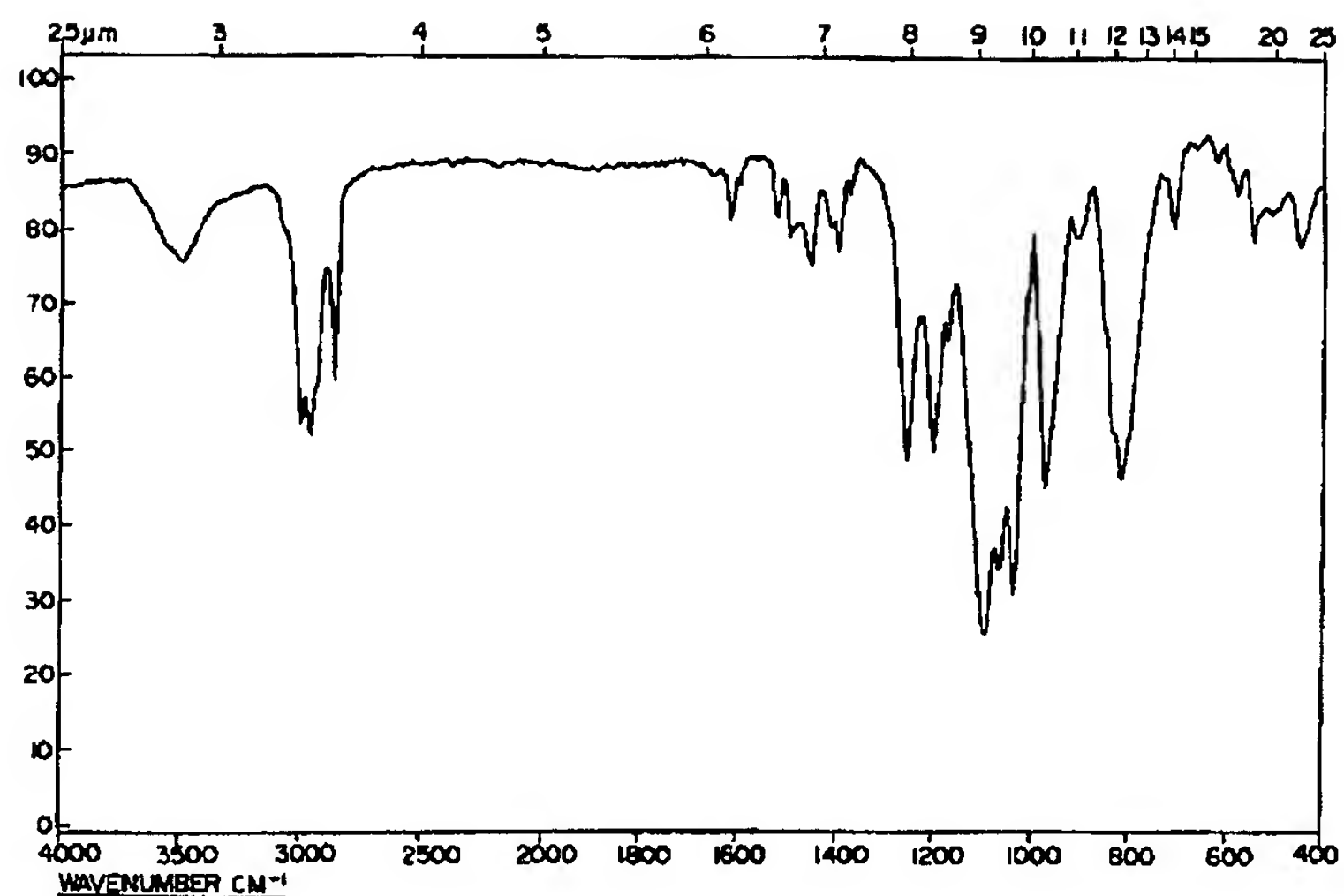
[Drawing 7]



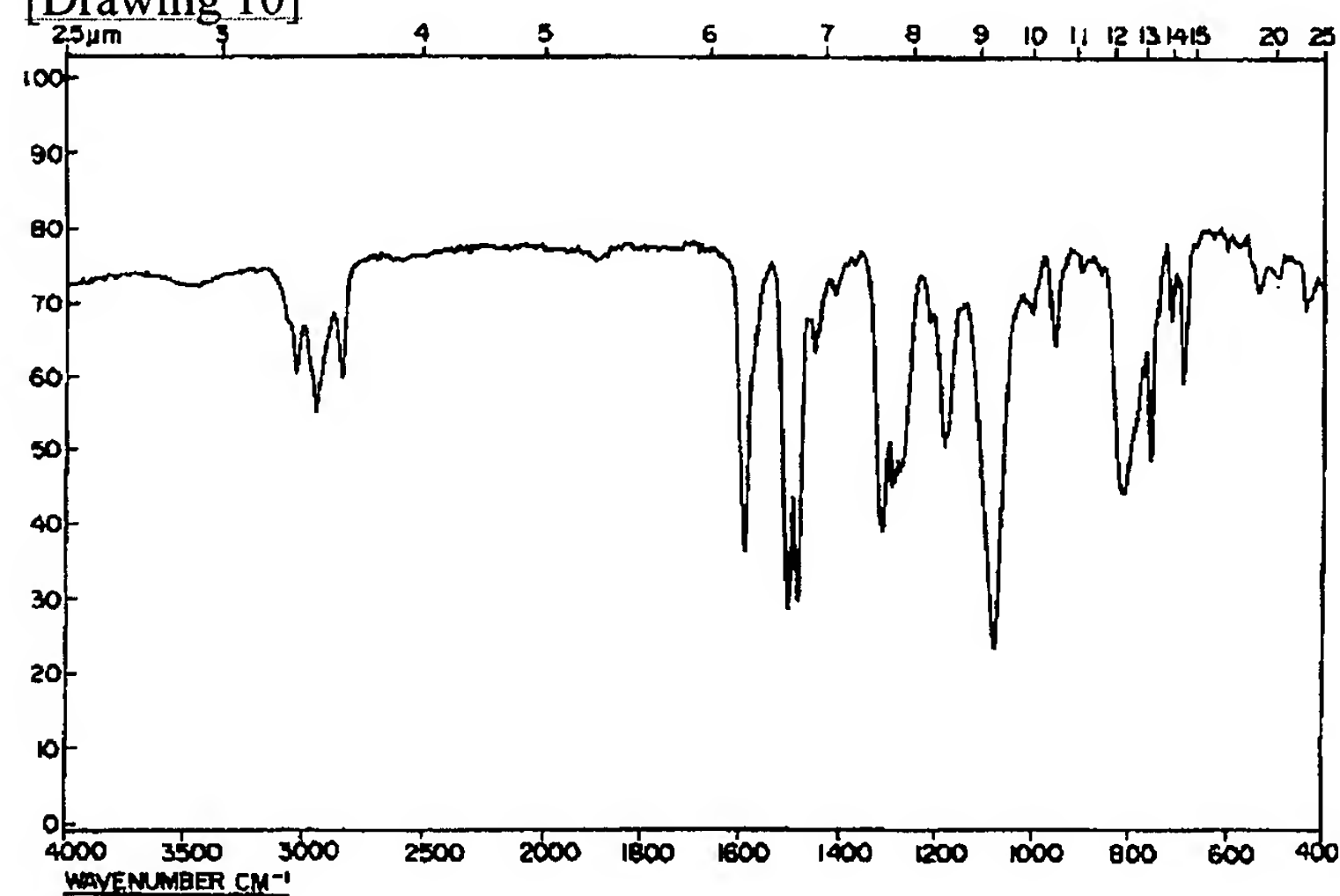
[Drawing 8]



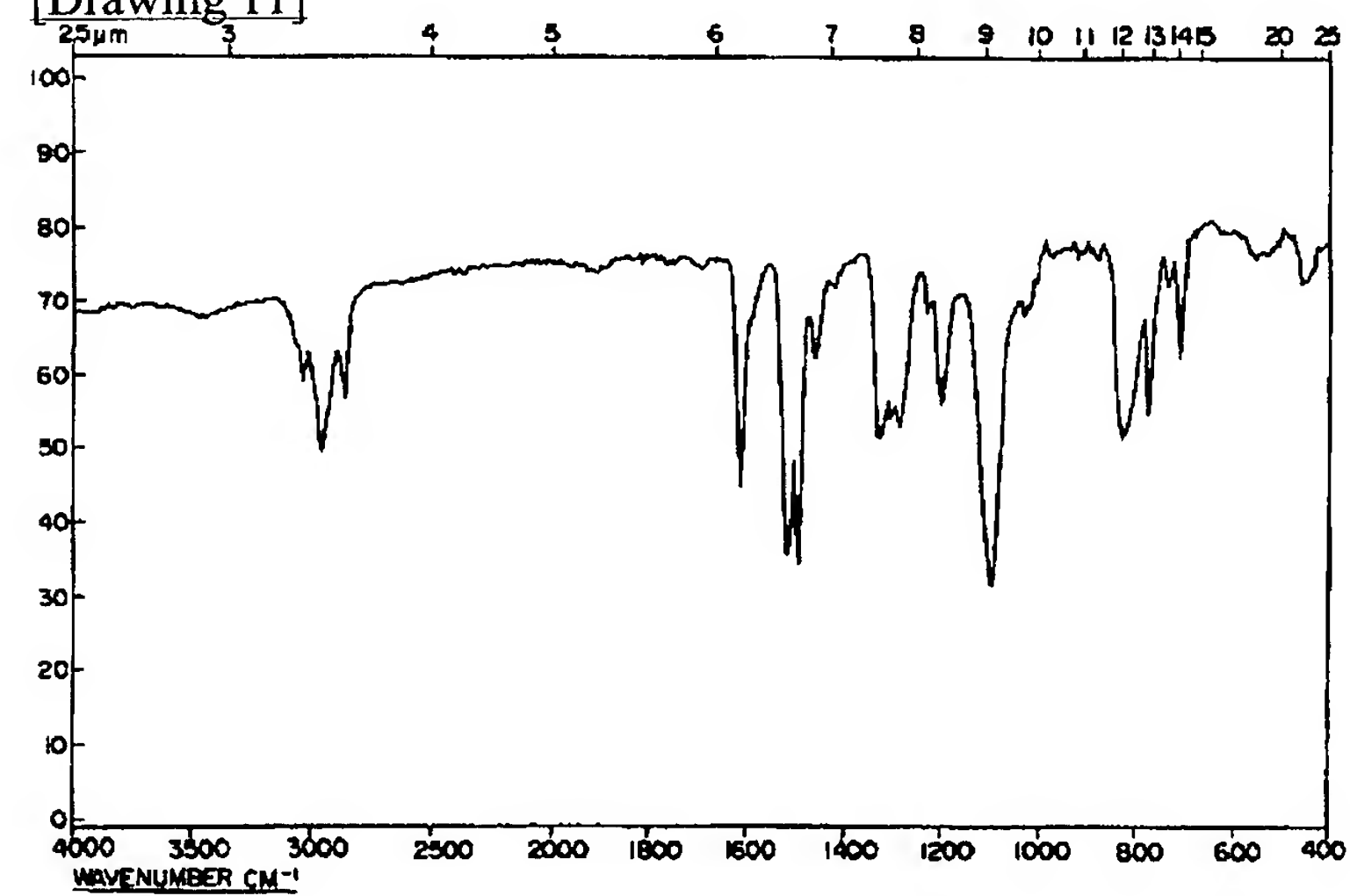
[Drawing 9]



[Drawing 10]

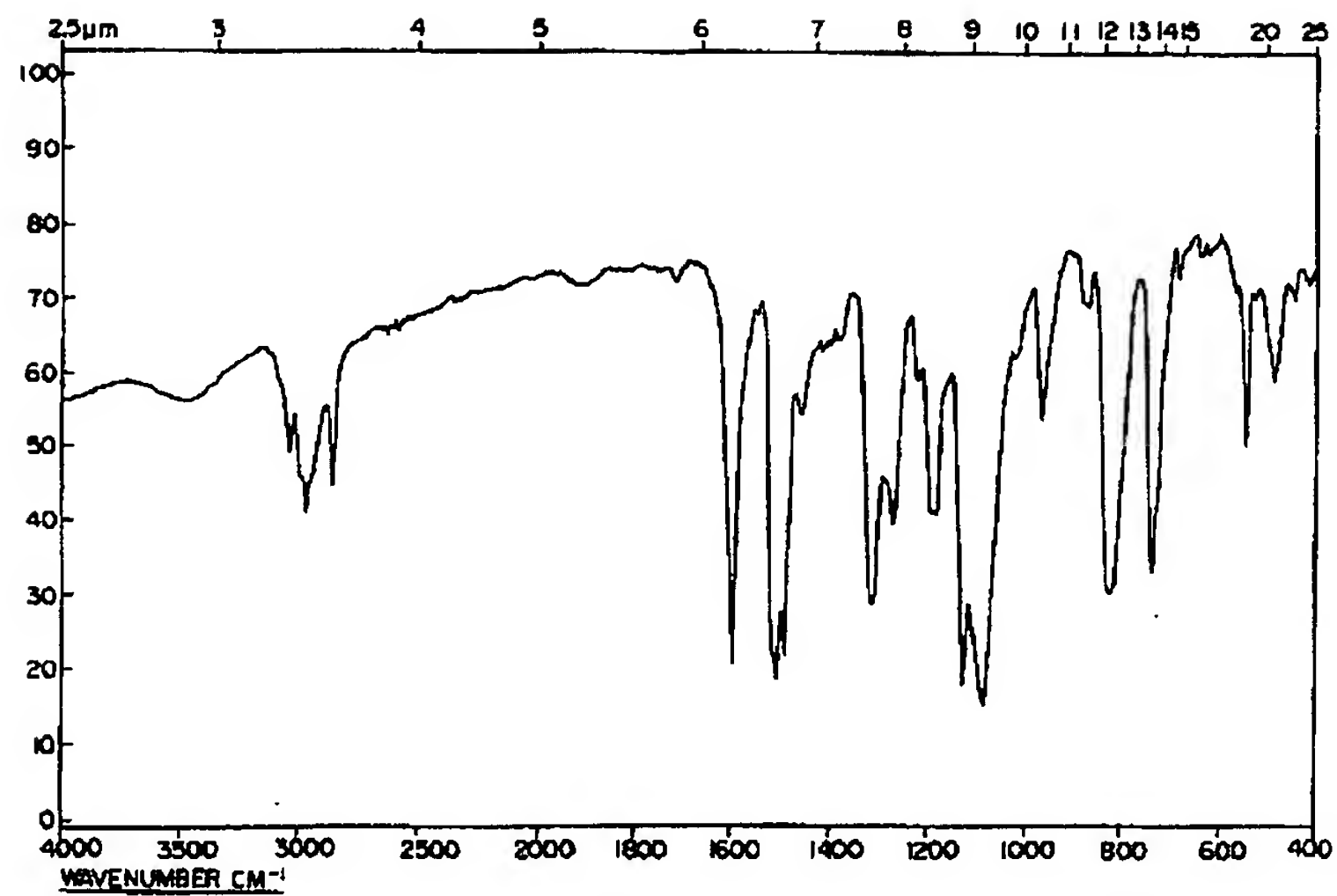


[Drawing 11]

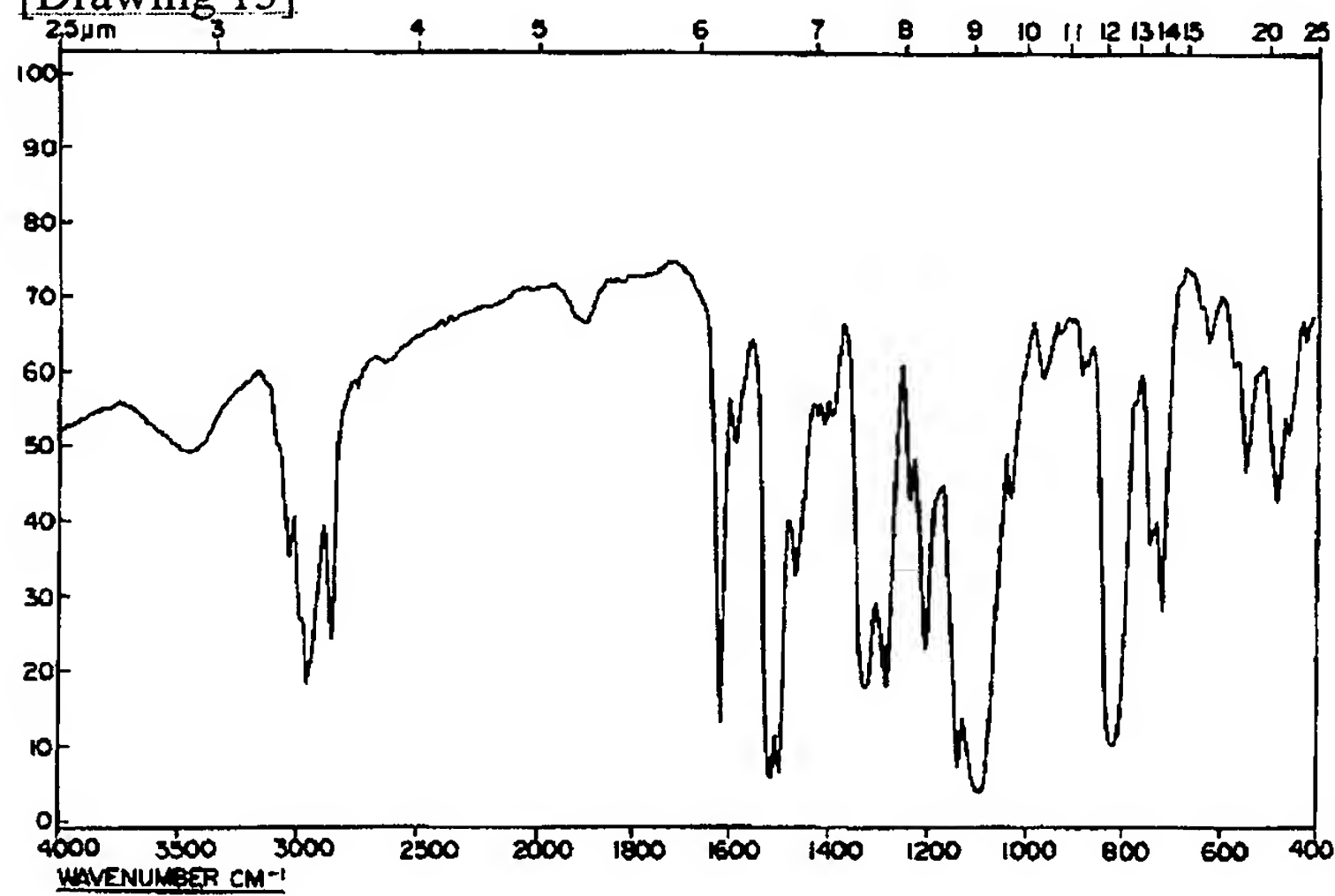


[Drawing 12]

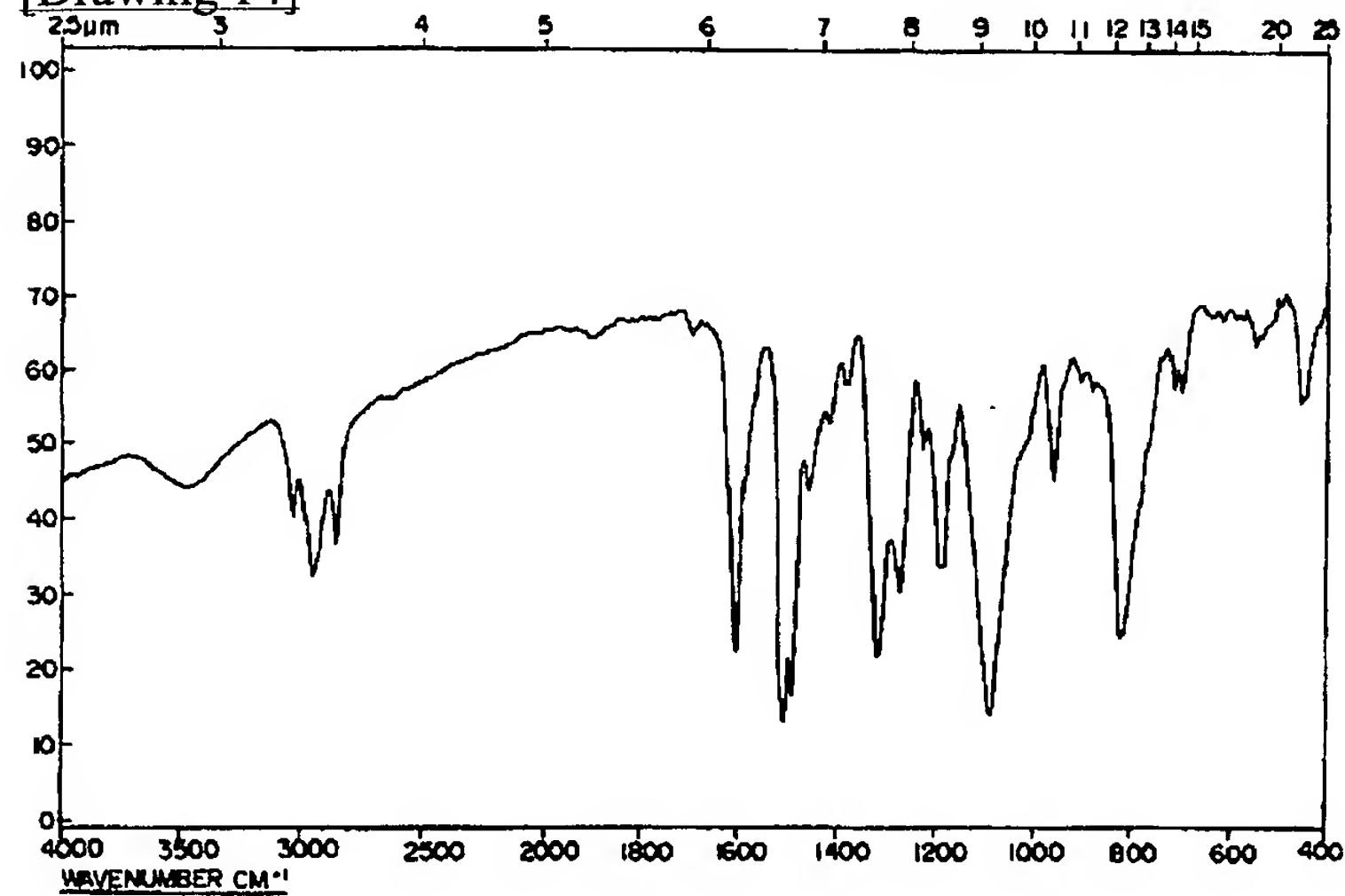




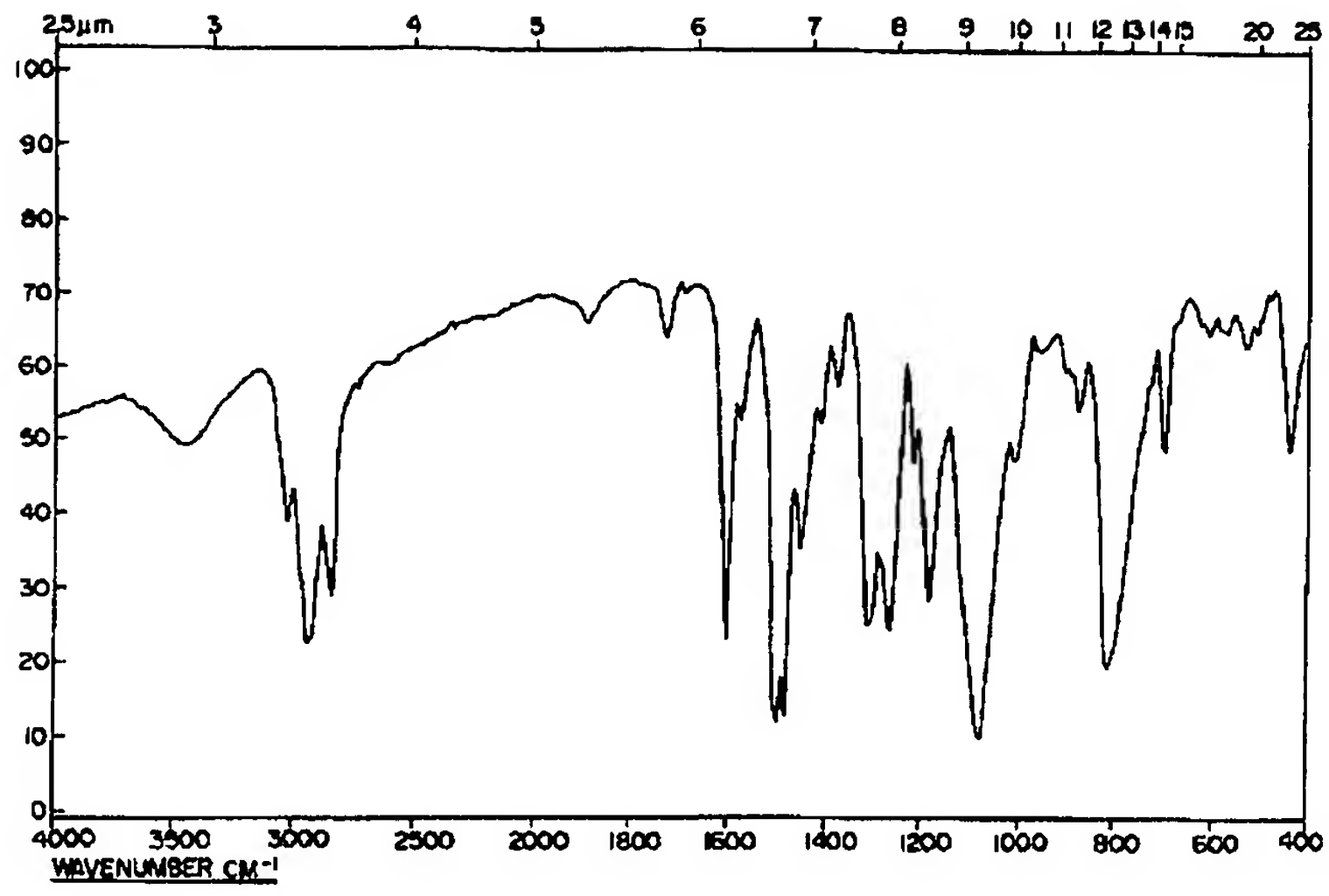
[Drawing 13]



[Drawing 14]



[Drawing 15]



---

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-251277

(43)公開日 平成10年(1998) 9 月22日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

C 0 7 F 7/18

C 0 7 F 7/18

M

W

G 0 3 G 5/06

3 1 2

G 0 3 G 5/06

3 1 2

審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 29 頁)

(21)出願番号 特願平9-180147

(22)出願日 平成9年(1997) 7 月 4 日

(31)優先権主張番号 特願平8-187931

(32)優先日 平 8 (1996) 7 月17日

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(31)優先権主張番号 特願平9-861

(32)優先日 平 9 (1997) 1 月 7 日

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(71)出願人 000005496

富士ゼロックス株式会社

東京都港区赤坂二丁目17番22号

(72)発明者 山田 渉

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内

(72)発明者 額田 克己

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内

(72)発明者 岩崎 真宏

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内

(74)代理人 弁理士 中島 淳 (外 4 名)

(54)【発明の名称】 シラン化合物及びその製造方法

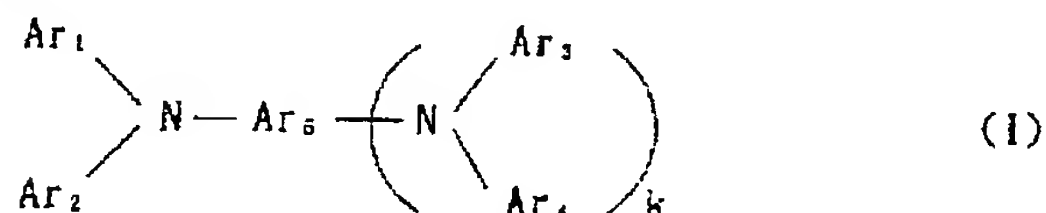
(57)【要約】

は 0 又は 1 を示す]

【課題】 有機電子デバイスに応用可能なように、溶解性、成膜性に優れ、強固な膜を形成する化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式 (I) で表されるシラン化合物。

【化 1】



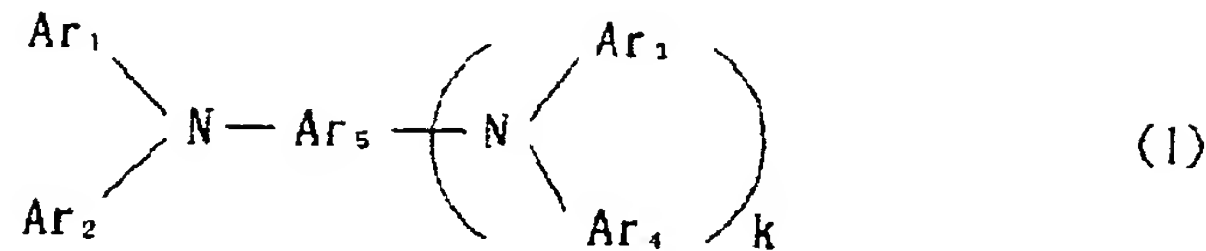
[式中、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>4</sub> はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、Ar<sub>5</sub> は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、且つ Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>5</sub> のうち 1 ~ 4 個は、-CH=CH-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub> 又は -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub> で示される置換基を有し、R<sub>1</sub> は水素、アルキル基、置換又は未置換のアリール基を示し、R<sub>2</sub> は水素、アルキル基、トリアルキルシリル基を示し、a は 1 ~ 3 の整数を示し、Y は 2 価の基を示し、k

【特許請求の範囲】

\*物。

【請求項1】 下記一般式 (I) で表されるシラン化合物\*

【化1】



〔式中、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_4$  はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、 $\text{Ar}_5$  は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、且つ $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  のうち1～4個は、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  又は $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  で示される置換基を有し、 $\text{R}_1$  は水素、アルキル基又は置換若しくは未置換のアリール基を示し、 $\text{R}_2$  は水素、アルキル基又はトリアルキルシリル基を示し、 $a$  は1～3の整数を示し、 $\text{Y}$  は2価の基を示し、 $k$  は0又は1を示す〕

【請求項2】 前記 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  のうち1～4個が $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  で示される置換基を有する請求項1に記載のシラン化合物。

【請求項3】 前記 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  のうち1～4個が $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  で示される置換基を有する請求項1に記載のシラン化合物。

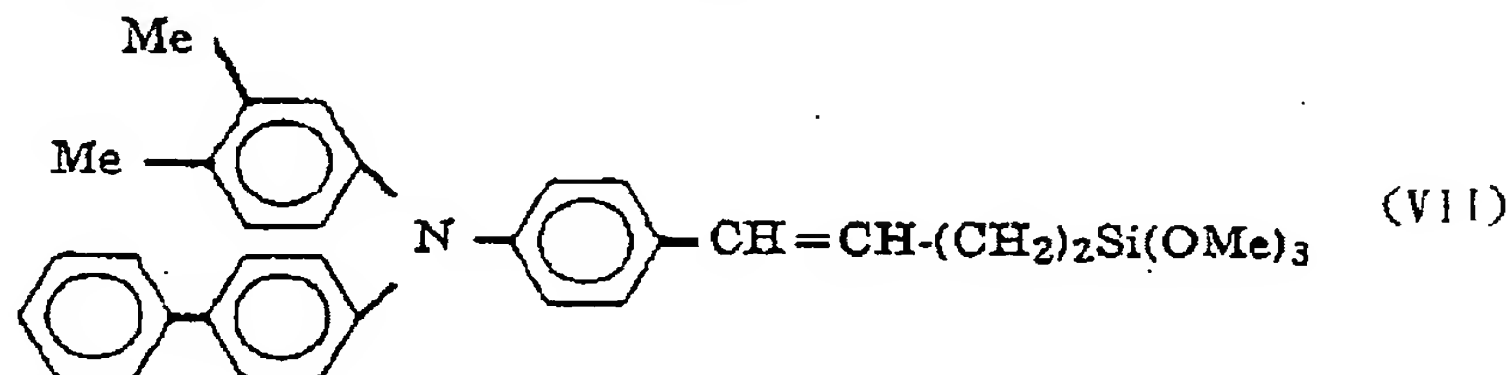
【請求項4】 前記 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_4$  は置換基を有するフェニル基を示し、 $\text{Ar}_5$  は置換基を有するアリール基又※

※はアリーレン基を示し、且つ $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  のうち1～4個は、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  又は $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  で示される置換基を有し、 $\text{R}_1$  は水素、アルキル基又は置換若しくは未置換のアリール基を示し、 $\text{R}_2$  は水素、アルキル基又はトリアルキルシリル基を示し、 $a$  は1～3の整数を示し、 $\text{Y}$  は2価の基を示し、 $k$  は0又は1を示すことを特徴とする請求項1に記載のシラン化合物。

【請求項5】  $x$  を1～15の整数、 $x'$  及び $x''$  をそれぞれ2から15の整数としたときに、前記 $\text{Y}$  が、 $-(\text{CH}_2)_x-$ 、 $-(\text{C}_{x'}\text{H}_{2x'-2})-$ 、 $-(\text{C}_{x''}\text{H}_{2x''-4})-$ 、及び置換又は未置換のアリーレン基を少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項2、3及び4のいずれか1項に記載のシラン化合物。

【請求項6】 下記構造式 (VII) で表されることを特徴とする請求項2に記載のシラン化合物。

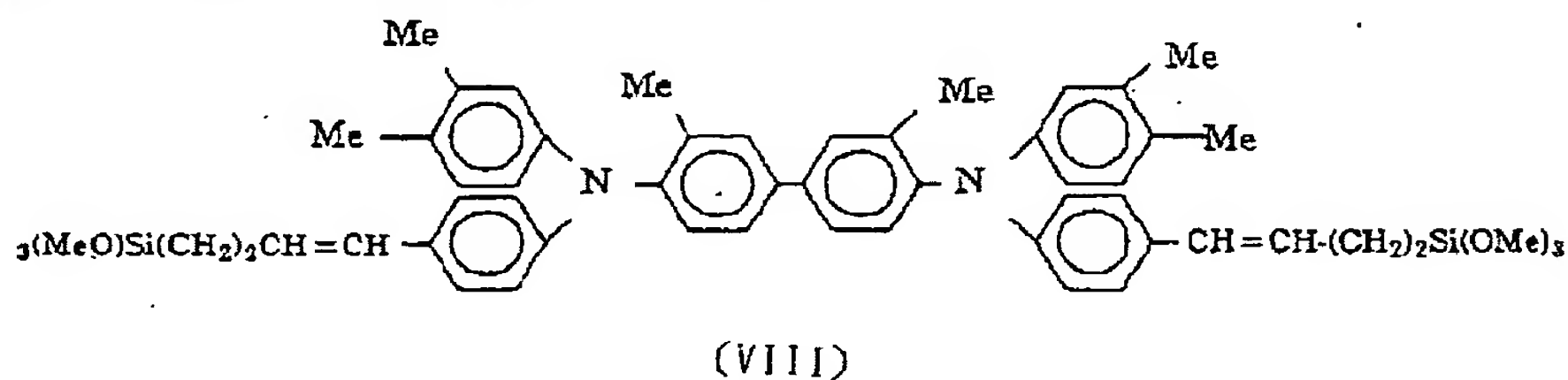
【化2】



【請求項7】 下記構造式 (VIII) で表されることを特徴とする請求項2に記載のシラン化合物。

★【化3】

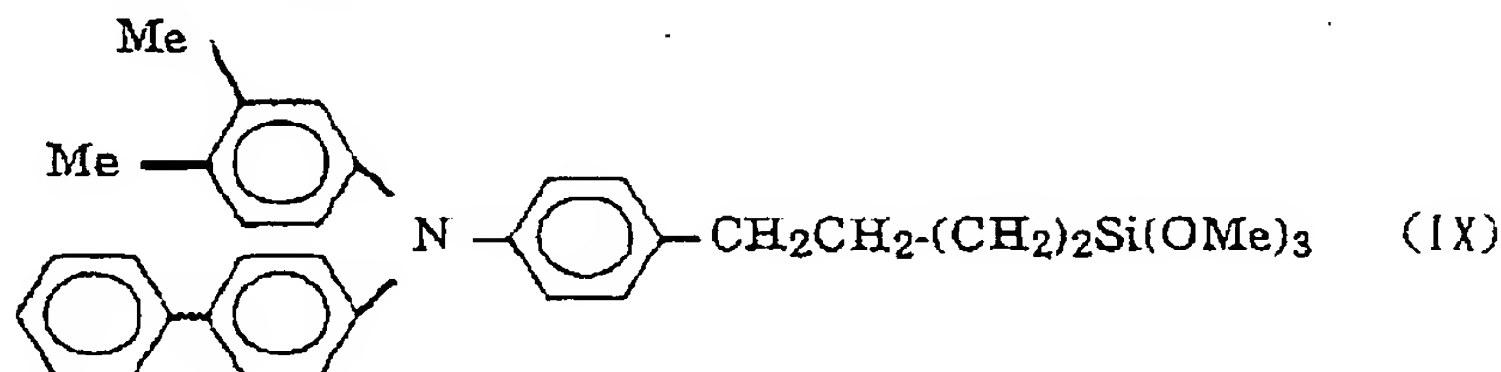
★



【請求項8】 下記構造式 (IX) で表されることを特徴とする請求項3に記載のシラン化合物。

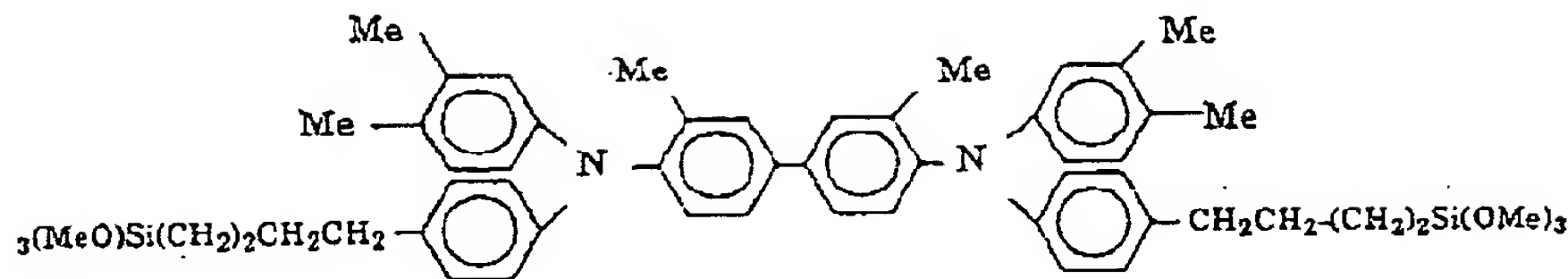
☆【化4】

☆



【請求項9】 下記構造式 (X) で表されることを特徴とする請求項3に記載のシラン化合物。

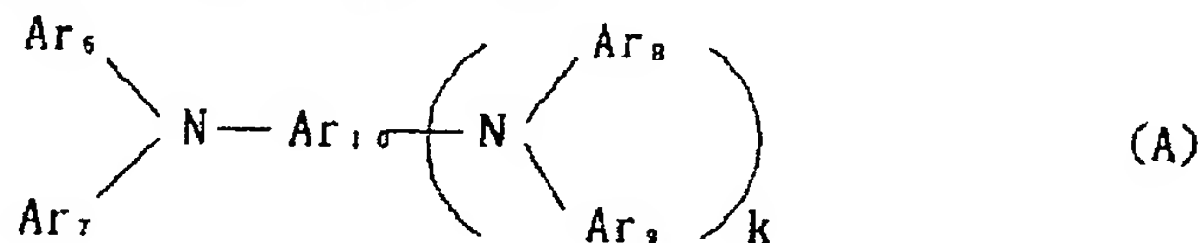
【化5】



(X)

【請求項10】 下記一般式(A)と下記一般式(B)とを塩基を用いて反応させることにより請求項2に記載\*

\*のシラン化合物を製造するシラン化合物の製造方法。  
【化6】



【式中、Ar<sub>6</sub>～Ar<sub>9</sub>はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、Ar<sub>10</sub>は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、且つAr<sub>6</sub>～Ar<sub>10</sub>のうち1～4個は、-CHO又は-CH<sub>2</sub>Lで置換され、kは0又は1を示し、LはPM(R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>又はHal※20

※1<sup>-</sup>P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>+</sup>を示し、Halはハロゲン原子を示し、MはO又はSを示し、R<sub>3</sub>はアルキル基、フェニル基、アルコキシ基、アミノ基を示す]

【化7】



【式中、R<sub>1</sub>は水素、アルキル基又は置換若しくは未置換のアリール基を示し、R<sub>2</sub>は水素、アルキル基又はトリアルキルシリル基を示し、aは1～3の整数を示し、Yは2価の基を示し、Tは一般式(A)が-CHOを有している場合には-CH<sub>2</sub>Lを示し且つ一般式(A)が-CH<sub>2</sub>Lを有している場合には-CHOを示し、LはPM(R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>又はHal<sup>-</sup>P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>+</sup>を示し、Halはハロゲン原子を示し、MはO又はSを示し、R<sub>3</sub>はアルキル基、フェニル基、アルコキシ基、アミノ基を示す]

【請求項11】 前記一般式(A)が-CHO基を有し、前記一般式(B)が-CH<sub>2</sub>L基を有することを特徴とする請求項10に記載のシラン化合物の製造方法。

【請求項12】 請求項2に記載のシラン化合物に水素を付加して請求項3に記載のシラン化合物を製造することを特徴とするシラン化合物の製造方法。

【請求項13】 水素化固体触媒を用いた接触還元により水素を付加することを特徴とする請求項12に記載のシラン化合物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なシラン化合物及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】電子写真用感光体の電荷輸送層は、一般に、ポリエステル等のようなバインダーポリマーと、トリアルールアミン、テトラアルールベンジジン系化合物等のような低分子の電荷輸送材料とを含んでおり、成膜

性を持たせるためにこれらの低分子の電荷輸送性材料はバインダーポリマー中に分散される。

【0003】しかし、バインダーポリマー中に低分子の電荷輸送性材料が分散されるために、バインダーポリマー本来の機械的強度が低下してしまい、その結果、電子写真感光体として用いた場合耐久性に劣るという問題がある。

【0004】上記の欠点を克服すべく、ポリビニルカルバゾール等のように、電荷輸送成分を主鎖に含む電荷輸送性ポリマーが提案されているが、未だ電気特性や強度の面で十分な特性の材料が得られていない。

【0005】また、近年低分子の電荷輸送材料を有機EL素子として応用することが注目されているが、この場合には、発生するジュール熱により低分子化合物が融解してしまい、寿命の長い安定な素子を得にくいという問題があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、溶解性、成膜性に優れ、強固な膜を形成し、有機EL素子や電子写真感光体等の種々の有機電子デバイスに応用可能な新規化合物及びその製造方法を提供することにある。

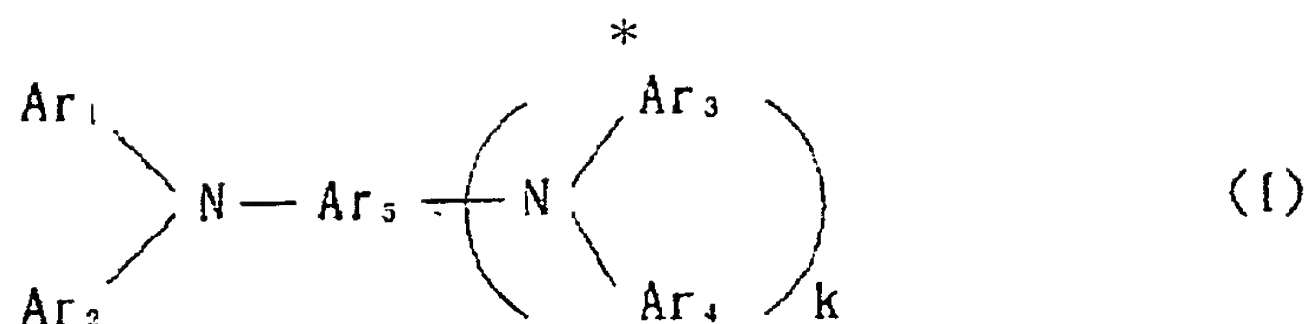
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題に対し鋭意検討した結果、特定のシラン化合物が3次元架橋硬化が可能であり、且つその膜が電荷輸送性、耐機械的磨耗性、及び環境安定性に優れ、高い耐久性を示すことを見出し、本発明を完成するに至った。

【0008】即ち、本発明は一般式(I)で表されるシ

ラン化合物である。

【0009】



【0010】式中、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_4$  はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、 $\text{Ar}_5$  は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、且つ  $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  のうち1～4個は、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_1(3-a)(\text{OR}_2)_a$  又は  $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_1(3-a)(\text{OR}_2)_a$  で示される置換基を有し、 $\text{R}_1$  は水素、アルキル基又は置換若しくは未置換のアリール基を示し、 $\text{R}_2$  は水素、アルキル基又はトリアルキルシリル基を示し、 $a$  は1～3の整数を示し、 $\text{Y}$  は2価の基を示し、 $k$  は0又は1を示す。

【0011】また、本発明者らは様々なシラン化合物の合成法を鋭意検討した。従来のシラン化合物の合成法としては、以下に挙げるような方法が知られている。

1) アルケンやアルキンのヒドロシリル化反応を用いた合成法

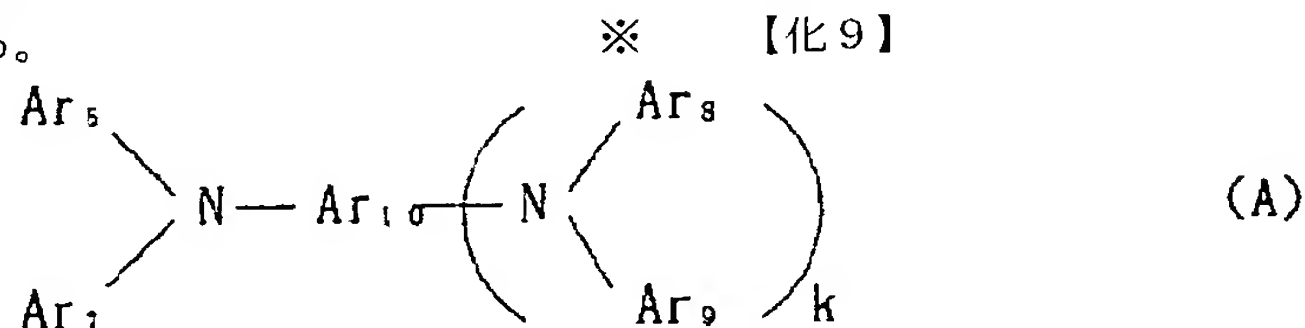
この方法は水素化ケイ素を種々の条件下で炭素-炭素不飽和結合に付加させ、有機ケイ素化合物を生成させる合成法の一つである。

【0012】アルケンやアルキンのヒドロシリル化反応の中では、触媒として「有機金属化学」(裳華房、1982年出版)の322頁等に表示されるようなSpeier試薬( $\text{H}_2\text{PtCl}_6/\text{IPA}$ (インプロピルアルコール))を用いたヒドロシリル化反応が、 $1 \times 10^{-7}$ モル程度の触媒添加量で合成が可能のため、 $\text{Si}-\text{C}$ 結合を持った様々なシラン化合物を工業的に合成する方法として有用である。

【0013】しかし、このようなヒドロシリル化反応では異性体や還元反応等による副生成物が混入するため、蒸留等による厳密な精製が必要であり、本発明のような沸点の高いシラン化合物の合成には困難が伴う。

2) Grignard反応を用いた合成法

「The Chemistry of Organic Silicon Compounds」(S. Patai編、1989年出版)の655頁等に表示されるように、Grignard試薬を用いることにより、シラン化合物の合成が可能である。



【0020】式中、 $\text{Ar}_6 \sim \text{Ar}_9$  はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、 $\text{Ar}_{10}$  は置換若しくは

※ 【0014】しかし、Grignard反応は酸素や水分等に非常に敏感であり、且つ多量の無機塩を生じるため処理が困難であり、工業化するには莫大な費用がかかる。

3) 脱塩酸反応を用いたアミン系シラン化合物の合成法

「The Chemistry of Organic Silicon Compounds」(S. Patai編、1989年出版)の655頁等に表示されるように、ハロゲン置換基の付いたシランとアミンの脱塩酸反応により、シラン化合物の合成が可能である。

【0015】しかし、得られる化合物は特殊なものに限られ、且つ必然的にアミノ基を有するため、電荷輸送材料に用いた場合、電荷トラップとなりやすく、電気特性に悪影響を与えやすいという欠点がある。

4) ウレタン結合形成反応を用いた合成法

特開平3-191358号公報にはウレタン結合を用いる、電荷輸送部位を有するシラン化合物の電子写真感光体への応用例が提案されている。

【0016】しかしながら、この方法で合成された化合物はヘテロ原子に直接結合した水素原子を有するため大気中の水分を吸着しやすく、電子写真感光体等の有機電子デバイスとして用いる際に、湿度等の影響を受けやすく、環境安定性に欠けるという欠点がある。

【0017】本発明者らは、これらの方法に対し、Wittig反応は、反応の選択性が高く副反応もほとんど起こらないため、処理が容易であり工業化に有利であることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0018】即ち、本発明は、下記一般式(A)で示される化合物と、下記一般式(B)で示される化合物とを塩基を用いて反応させることにより一般式(I)で表され、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  の1～4個が  $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_1(3-a)(\text{OR}_2)_a$  を有するシラン化合物を合成することを特徴とする。

【0019】

【化9】

は未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、且つ  $\text{Ar}_6 \sim \text{Ar}_{10}$  のうち1～4個は、 $-\text{CHO}$  又は  $-\text{CH}_2$



Lで置換され、kは0又は1を示し、LはPM(R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>又はHal<sup>-</sup>P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>+</sup>を示し、Halはハロゲン原子を示し、MはO又はSを示し、R<sub>3</sub>はアルキル

\*基、フェニル基、アルコキシ基、アミノ基を示す。

【0021】

【化10】



【0022】式中、R<sub>1</sub>は水素、アルキル基、置換又は未置換のアリール基を示し、R<sub>2</sub>は水素、アルキル基、トリアルキルシリル基を示し、aは1~3の整数を示し、Yは2価の基を示し、Tは一般式(A)が-CHOを有している場合には-CH<sub>2</sub>Lを示し且つ一般式

※ミノ基を示す。

【0023】

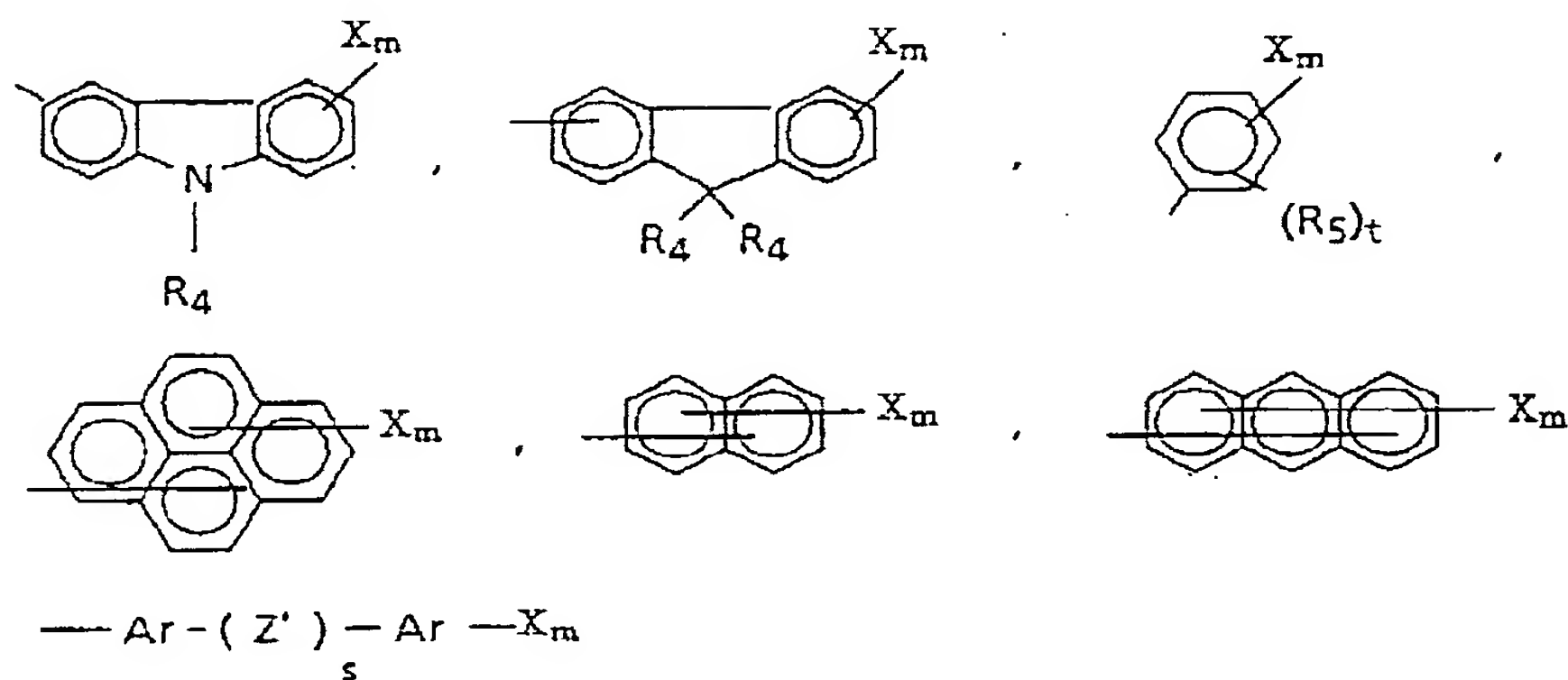
【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。

(A)が-CH<sub>2</sub>Lを有している場合には-CHOを示し、LはPM(R<sub>3</sub>)<sub>2</sub>又はHal<sup>-</sup>P(R<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>+</sup>を示し、Halはハロゲン原子を示し、MはO又はSを示し、R<sub>3</sub>はアルキル基、フェニル基、アルコキシ基、ア

【0024】本発明のシラン化合物は前記一般式(I)で表される。式中、Ar<sub>1</sub>~Ar<sub>4</sub>はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、具体的には、以下のものが挙げられる。

【0025】

【化11】

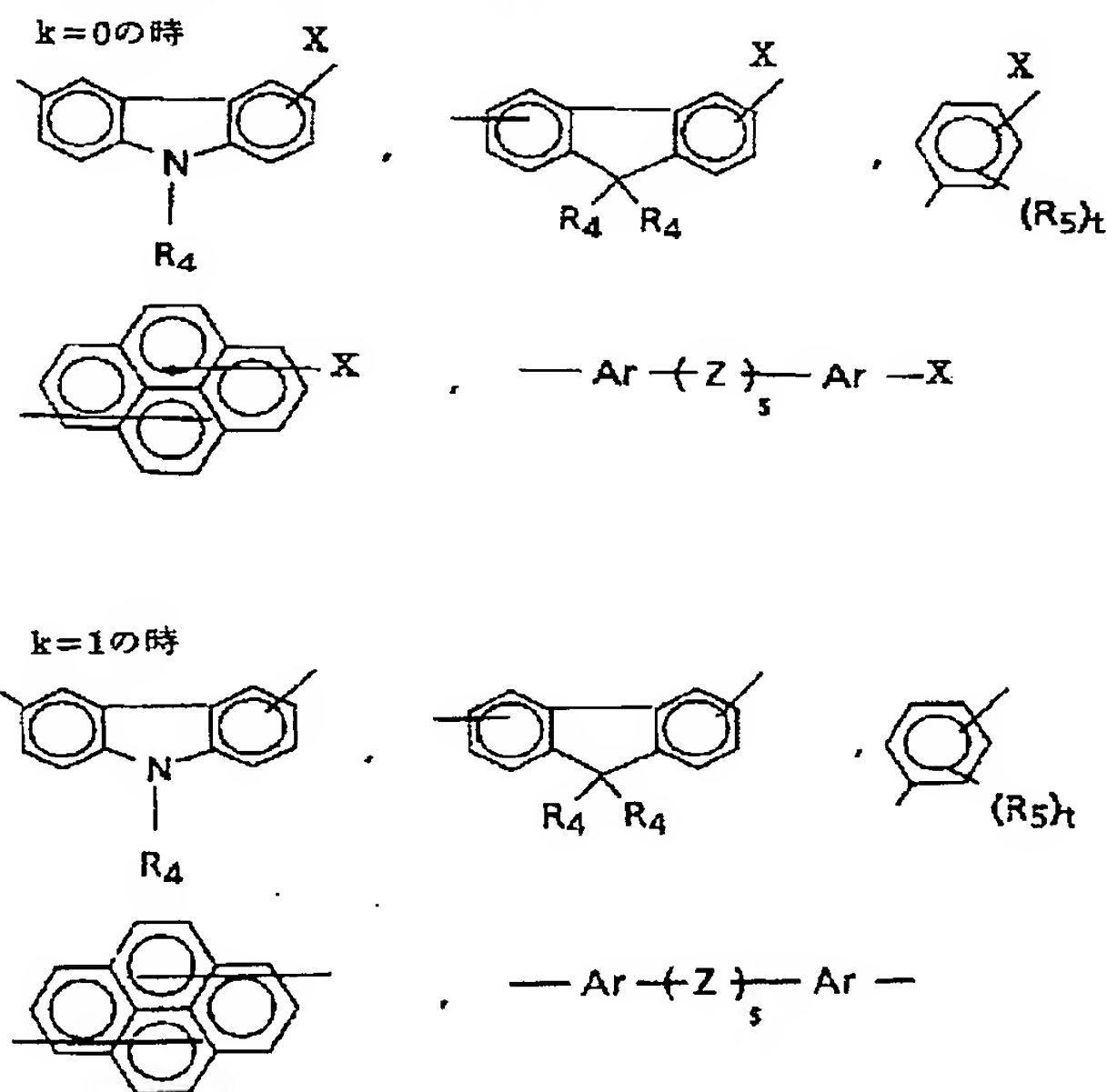


【0026】また、一般式(I)中、kは0又は1を示し、Ar<sub>5</sub>は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、具体的には、以下のものが挙げられ

★る。

【0027】

【化12】

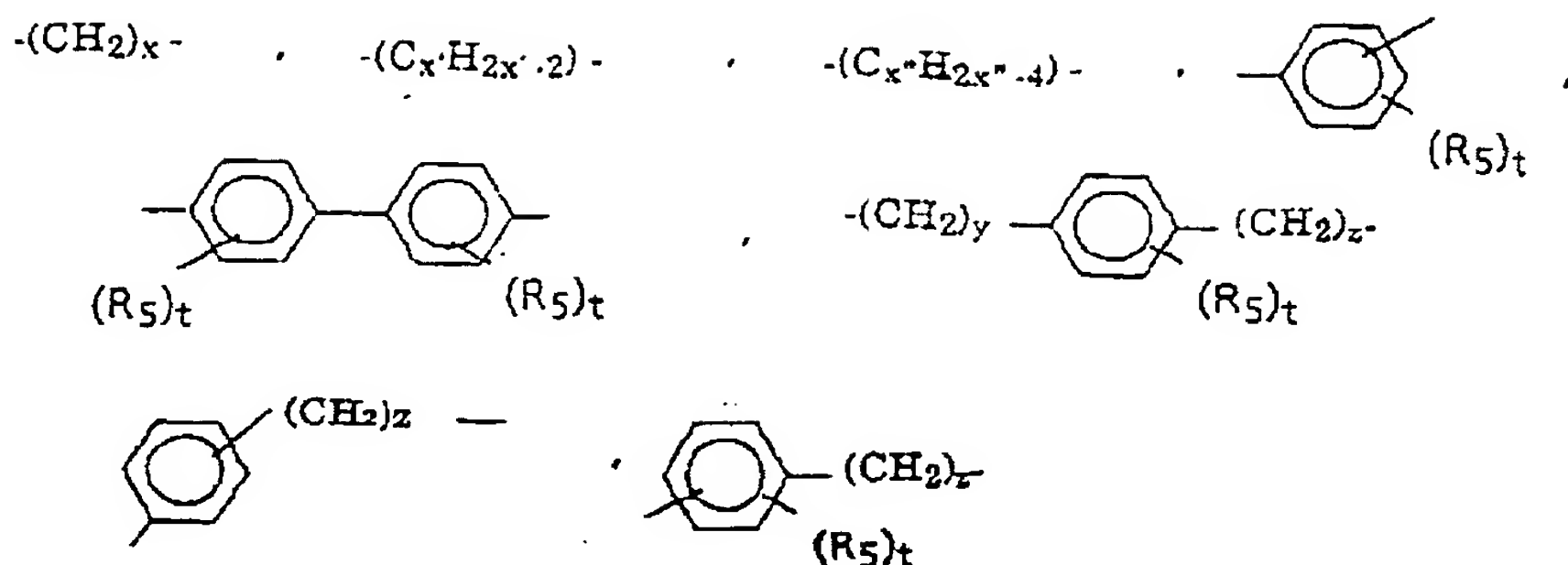


【0028】ここで、Xは-CH=CH-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub>又は-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y-SiR<sub>1(3-a)</sub>(OR<sub>2</sub>)<sub>a</sub>を示す。Yは2価の基を示し、具体的には、以下のものが挙げられる。

50 的には、以下のものが挙げられる。

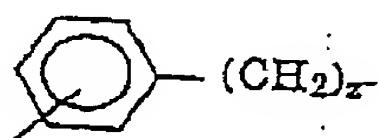
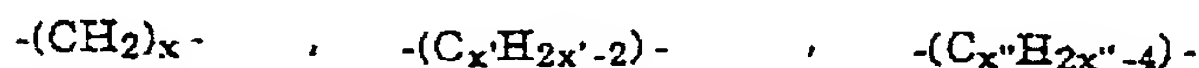
【 0 0 2 9 】

\* \* 【化 1 3】



【0030】この中では、特に以下のものが好ましい。 ※【化14】

【 0 0 3 1 】

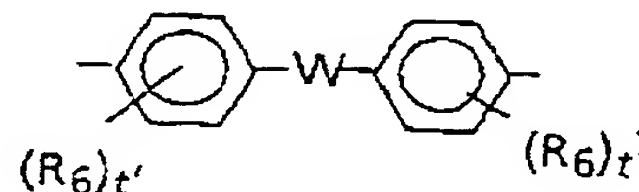
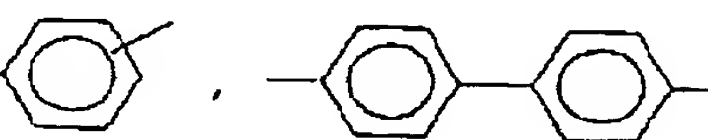
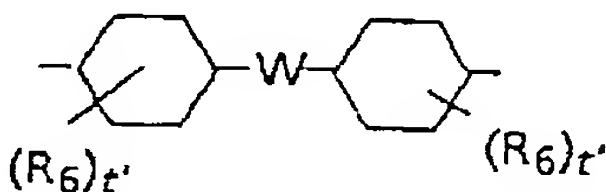
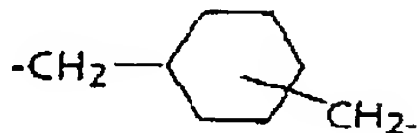
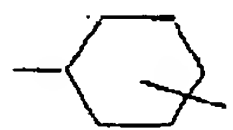
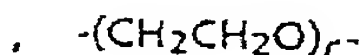
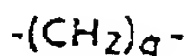
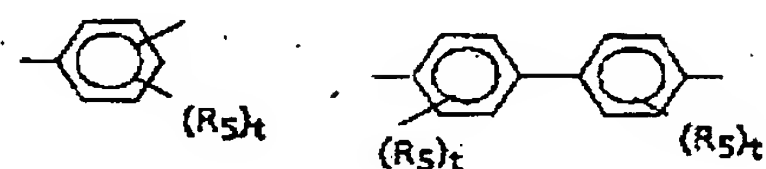


【0032】上記の $A_{r1} \sim A_{rs}$ のうち1~4個は、 $-CH=CH-Y-SiR_{1(3-a)}(OR_2)_a$  又は  $-CH_2CH_2-Y-SiR_{1(3-a)}(OR_2)_a$  で示される置換基を有していることが必要である。

【0033】また、 $A_r$  は以下の基から選択される。

【 0 0 3 4 】

【化 1 5】

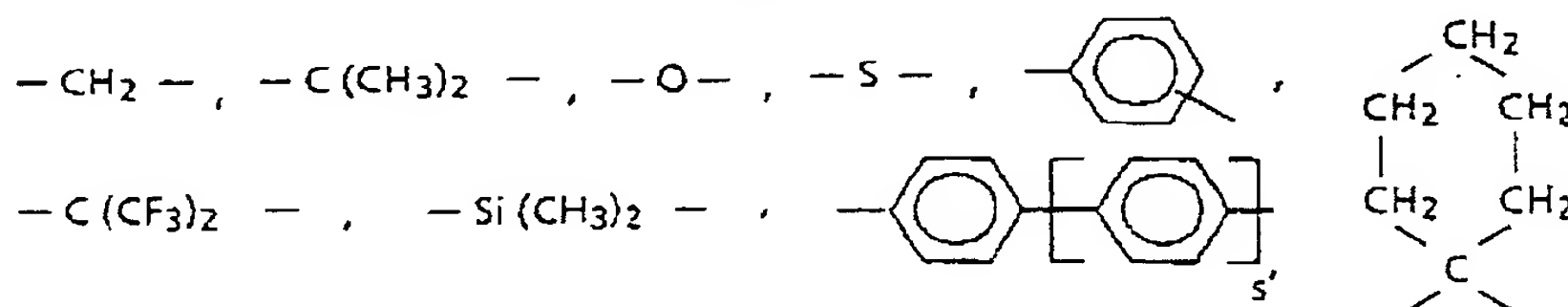


【0039】さらに、Wは以下の基から選択される。

【 0 0 4 0 】

★【化18】

★

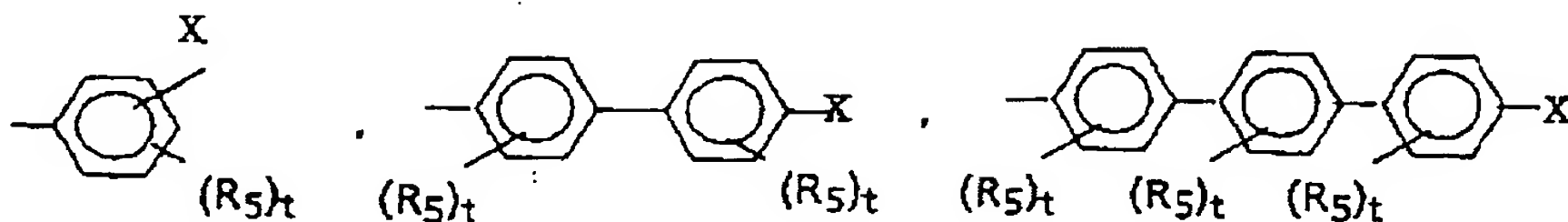


【0041】また、R<sub>4</sub>は水素、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルキル基若しくは炭素数1～4のアルコキシ基で置換された置換又は未置換のフェニル基、炭素数7～10のアラルキル基から選択される。さらに、R<sub>5</sub>は水素、炭素数1～4のアルキル基、炭素数

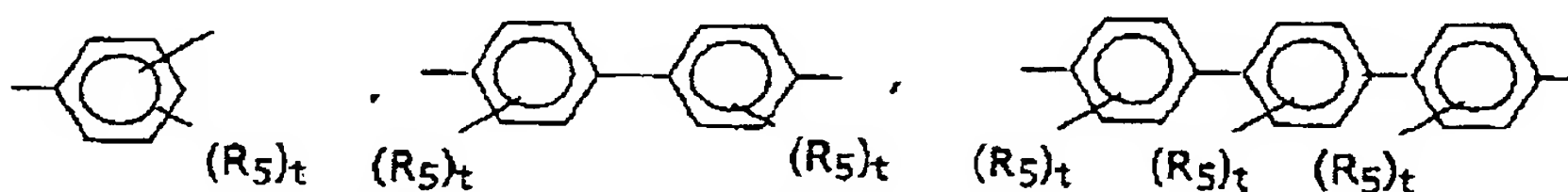
1～4のアルコキシ基、ハロゲン原子から選択される。  
R<sub>1</sub>は水素、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～4のアルキル基若しくは炭素数1～4のアルコキシ基で置換された置換又は未置換のアリール基を示し、R<sub>2</sub>は水素、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアル

キル基で置換されたトリアルキルシリル基を示す。また、 $R_5$  は水素、炭素数 1~4 のアルキル基から選択される。 $m$ 、 $s$  及び  $s'$  はそれぞれ 0 又は 1 を示し、 $t$  及び  $a$  はそれぞれ 1~3 の整数を示し、 $y$  及び  $z$  はそれぞれ 1~5 の整数を示す。また、 $x$  は 1~15 の整数を示し、 $x'$  及び  $x''$  はそれぞれ 2~15 の整数を示す。さらに、 $t'$  は 1 又は 2 の整数を示し、 $q$  及び  $r$  はそれぞれ 1~10 の整数を示す。

$k=0$  の時



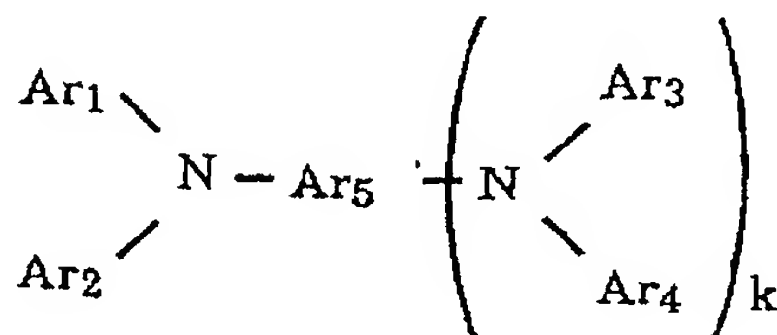
$k=1$  の時



【0045】一般式 (I) のシラン化合物の具体例を表 20 ※ 【0046】  
1~16 に示す。

※

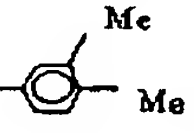
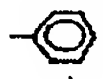
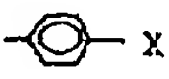
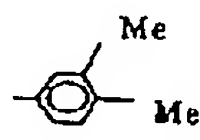
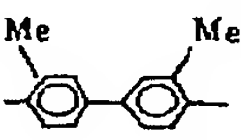
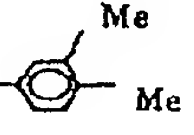

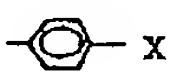
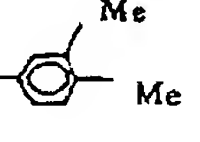
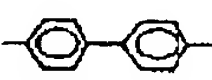
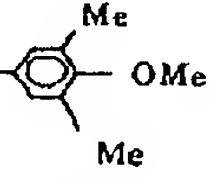

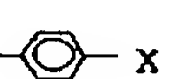
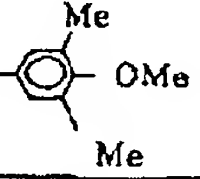
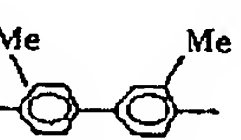
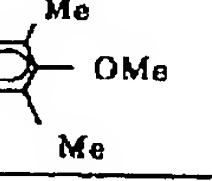


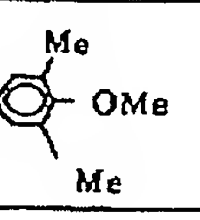
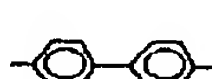
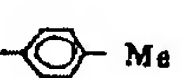


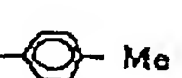
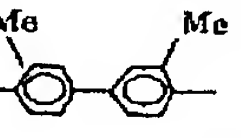
【表 1】



化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
1	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
2	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
3	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
4	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
5	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-$ $(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$




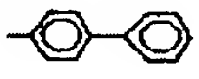
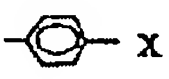

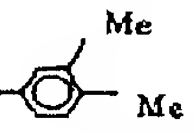


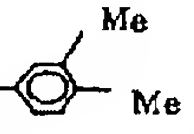


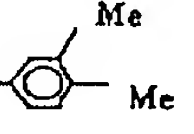

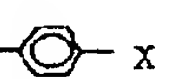
【0047】

【表 2】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
7	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
8	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
9	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
10	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$

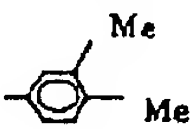


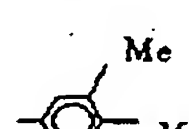

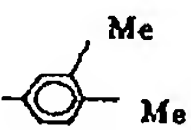


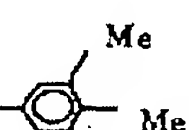

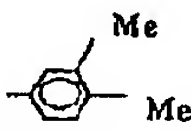


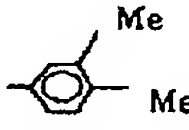
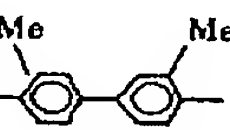
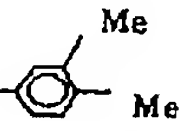


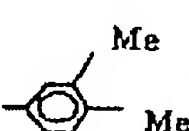

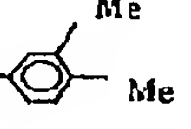


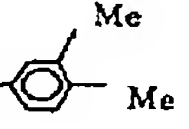
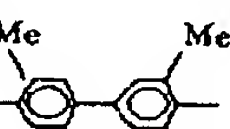
【0048】

\* \* 【表3】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
11	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
12	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
13	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
14	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
15	0			—	—		$-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-$ $(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$


























【0049】

【表4】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
16	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
17	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
18	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OEt})_3$
19	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
20	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-$ $(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$

【0050】



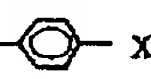
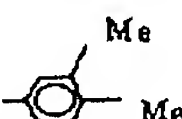

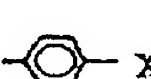



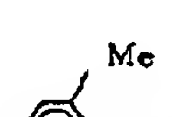


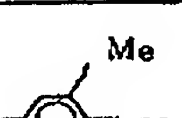


\* \* 【表5】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
26	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
27	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
28	1						$-\text{CH}=\text{CH}-(\text{CH}_2)_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_3$
29	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2$ $-\text{Si}(\text{OMe})_2\text{Me}$
30	1						$-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-$ $(\text{CH}_2)_2-\text{Si}(\text{OMe})_3$

【0051】

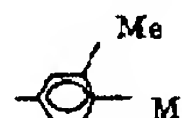
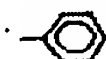



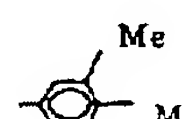


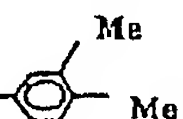

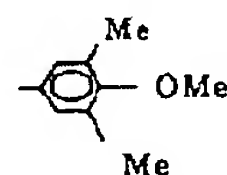


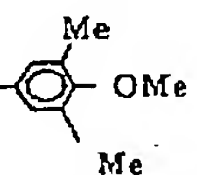

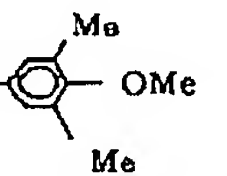


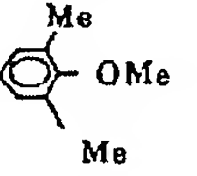

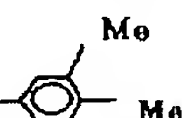


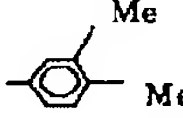

【表6】



化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
3 1	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OMe)}_3$
3 2	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OEt)}_3$
3 3	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-Si(OEt)}_3$
3 4	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_4\text{-Si(OEt)}_2\text{Me}$
3 5	0			—	—		$\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-C}_6\text{H}_4\text{-Si(OMe)}_3$

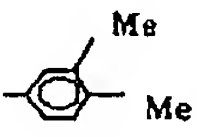
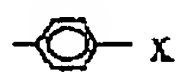
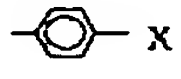
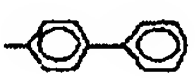
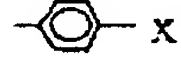

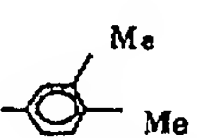

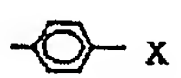
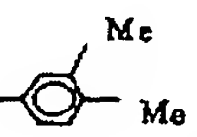
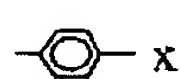
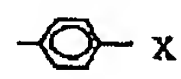
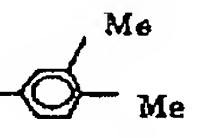


【0052】

\* \* 【表 7】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
3 6	1						$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OMe)}_3$
3 7	1						$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OMe)}_3$
3 8	1						$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OMe)}_3$
3 9	1						$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-(CH}_2)_2\text{-Si(OMe)}_3$
4 0	1						$\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{-C}_6\text{H}_4\text{-Si(OMe)}_3$

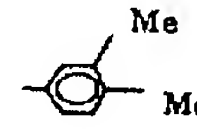

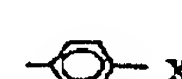
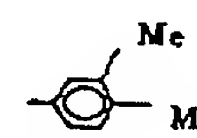
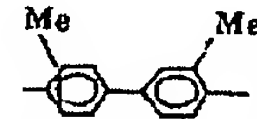
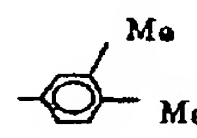


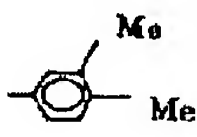

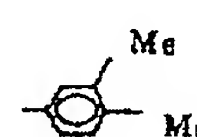
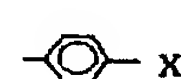

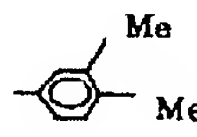
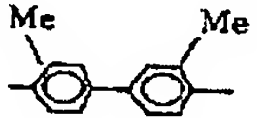
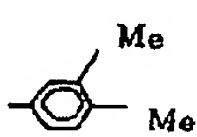


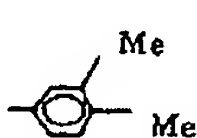

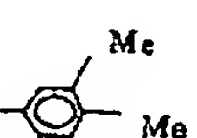


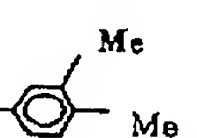

【0053】

【表 8】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
4 1	0			—	—		-CHCH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
4 2	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
4 3	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OEt) <sub>3</sub>
4 4	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>2</sub> Me
4 5	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>

【0054】

\* \* 【表9】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
4 6	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
4 7	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
4 8	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OEt) <sub>3</sub>
4 9	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub> -Si(OMe) <sub>2</sub> Me
5 0	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>

【0055】

【表10】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
5 1	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
5 2	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
5 3	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OEt) <sub>3</sub>
5 4	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>2</sub> Me
5 5	0			—	—		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>


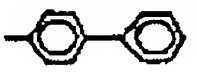

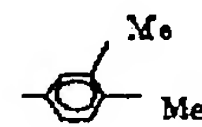
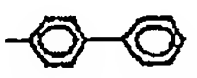

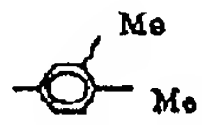


【0056】

\* \* 【表 11】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
5 6	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
5 7	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
5 8	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
5 9	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>2</sub> Me
6 0	1						-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>

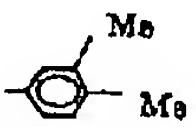

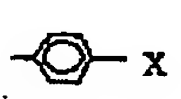
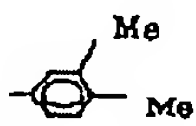
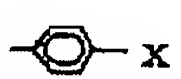
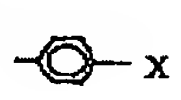
【0057】

【表 12】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 1	0			—	—		-CH=CH-Si(OEt) <sub>3</sub>
6 2	0			—	—		-CH=CH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>
6 3	0			—	—		-CH=CH-CH <sub>2</sub> - Si(OEt) <sub>3</sub>

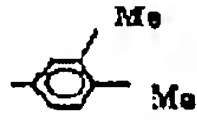


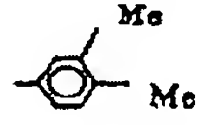
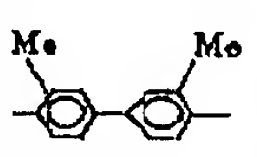
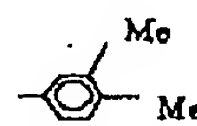


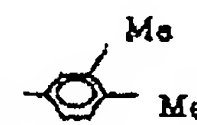
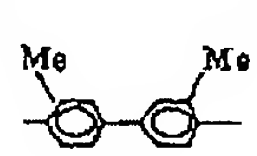
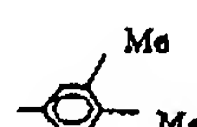
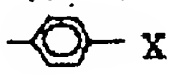
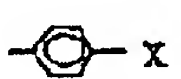
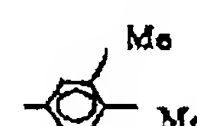

【0058】

\* \* 【表13】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 4	0			—	—		-CH=CH-Si(OEt) <sub>3</sub>
6 5	0			—	—		-CH=CH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>

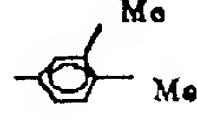
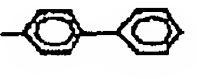
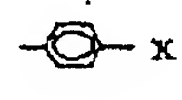
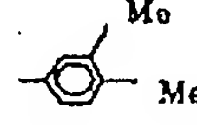
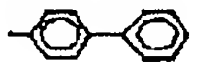
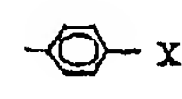
【0059】

※ ※ 【表14】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 6	1						-CH=CH-Si(OEt) <sub>3</sub>
6 7	1						-CH=CH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - Si(OMe) <sub>3</sub>
6 8	1						-CH=CH-CH <sub>2</sub> - Si(OEt) <sub>3</sub>

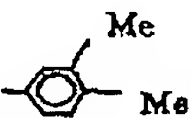
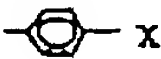

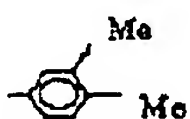
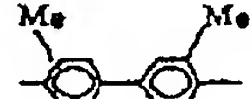
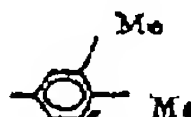


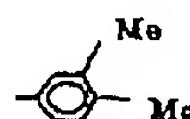

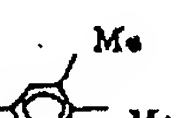


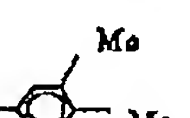

【0060】

★ ★ 【表15】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
6 9	0			—	—		-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> - (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -Si(OMe) <sub>3</sub>
7 0	0			—	—		-(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> -Si(OEt) <sub>3</sub>

【0061】

50 【表16】

化合物	k	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	X
71	1						$-(CH_2)_7-Si(OEt)_3$
72	1						$-(CH_2)_2-C_6H_4-(CH_2)_2-Si(OMe)_3$
73	1						$-(CH_2)_3-Si(OEt)_3$

【0062】本発明のシラン化合物を電子写真用感光体の表面保護層に用い、硬化させる場合には、ケイ素を含む置換基を2個以上有するものが、硬度の高い膜を得ることができるため好ましい。

【0063】一般式(I)で表され、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>5</sub>の1～4個が $-CH=CH-Y-SiR_{1(3-a)}(OR_2)_a$ を有するシラン化合物は、前記一般式(A)で表される化合物と、前記一般式(B)で表される化合物とを不活性ガス下、塩基を用いて反応させることにより、合成\*

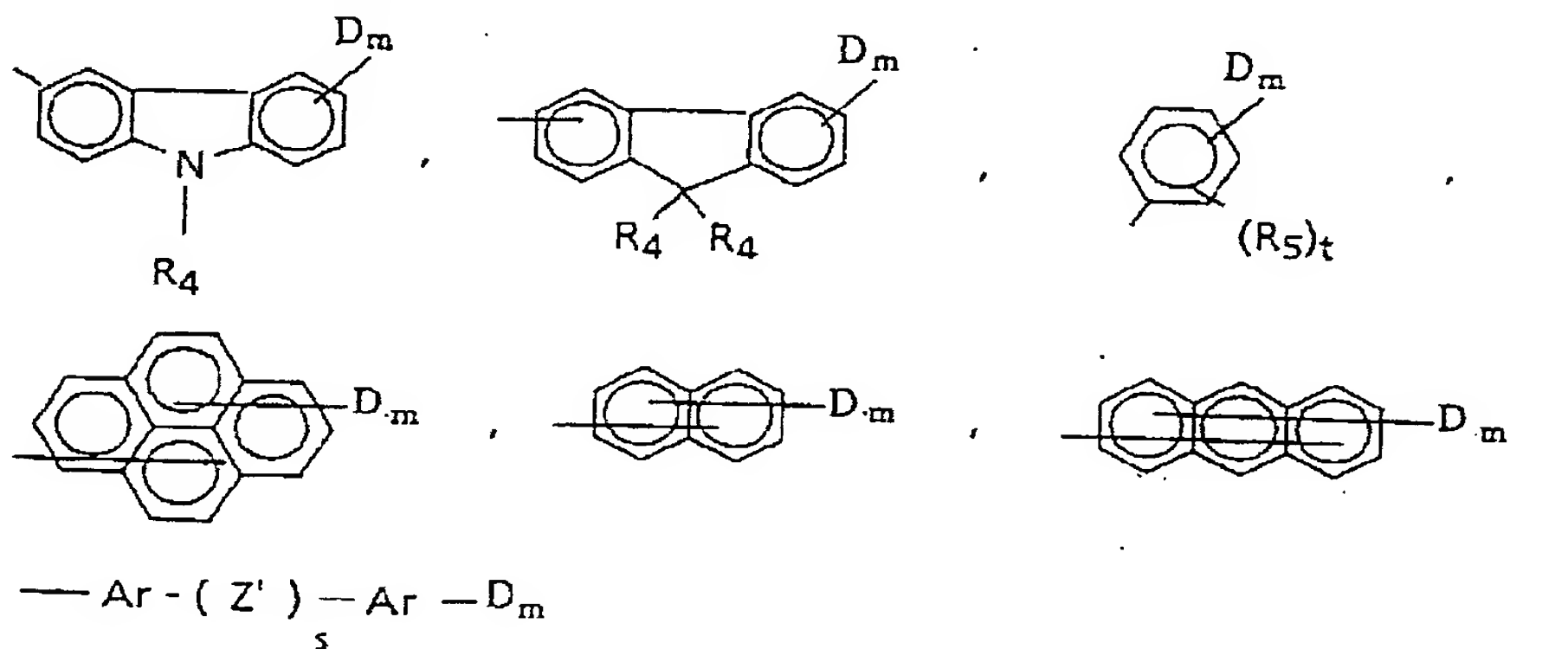
することができる。

【0064】一般式(A)、(B)中、一般式(I)の置換基、数値と同じ置換基、数値については、同一の符号を付して説明を省略する。

【0065】一般式(A)中、Ar<sub>6</sub>～Ar<sub>9</sub>はそれぞれ独立に置換又は未置換のアリール基を示し、具体的には、以下のものが挙げられる。

【0066】

【化20】



【0067】また、一般式(A)中、Ar<sub>10</sub>は置換若しくは未置換のアリール基又はアリーレン基を示し、具体的には、以下のものが挙げられる。

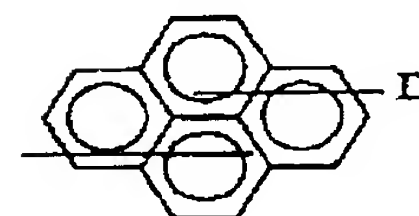
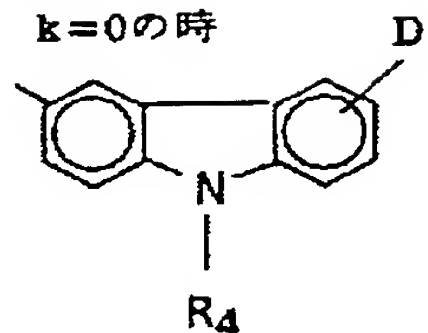
【0068】

【化21】

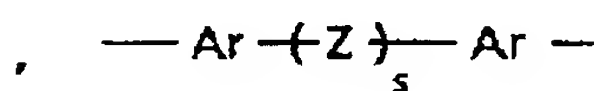
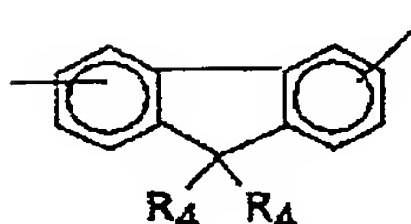
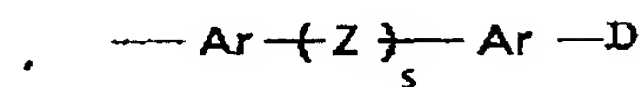
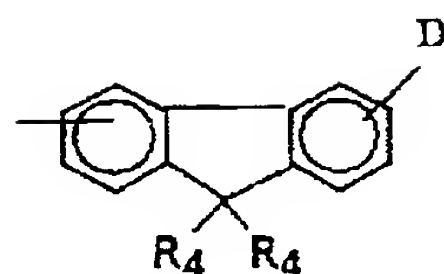
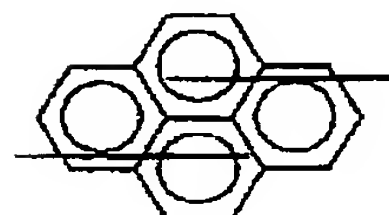
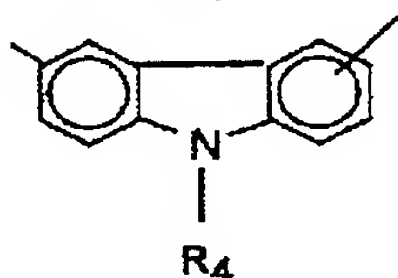


27

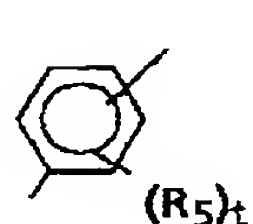
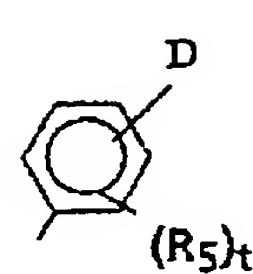
k=0の時



k=1の時



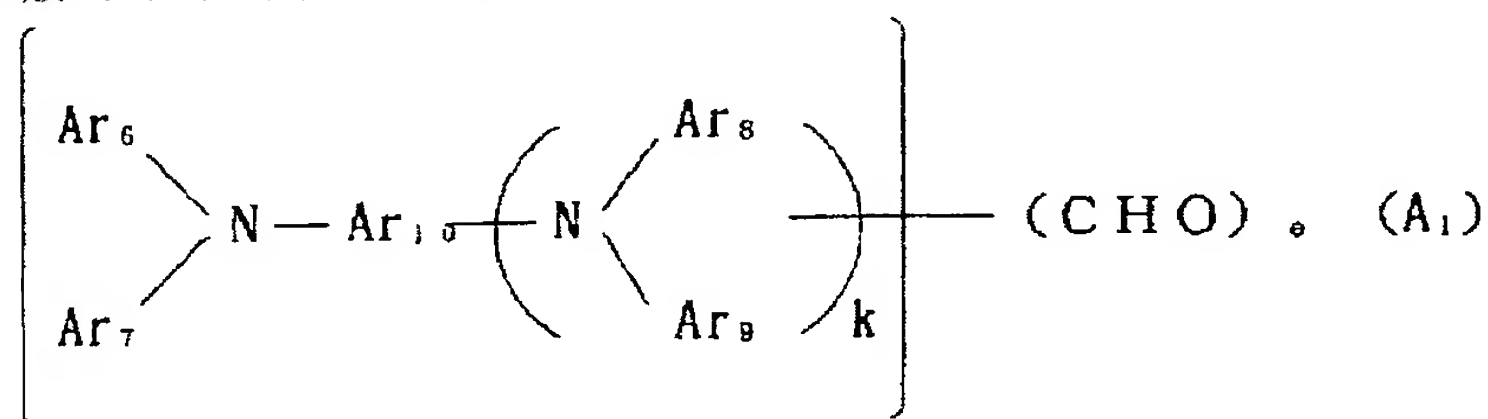
28



【0069】ここで、Dは $-CHO$ 又は $-CH_2L$ を示す。Lは $PM(R_3)_2$ 又は $Hal^-P(R_3)_3^+$ を示し、Halはハロゲン原子を示し、MはO又はSを示す。また、 $R_3$ は炭素数1~4のアルキル基、フェニル基、炭素数1~4のアルコキシ基、アミノ基を示す。

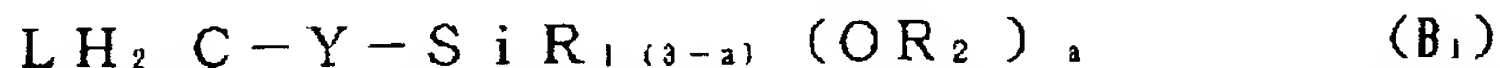
【0070】上記の $Ar_6 \sim Ar_{10}$ のうち1~4個は、 $-CHO$ 又は $-CH_2L$ で示される置換基を有していることが必要である。

【0071】また、一般式(B)中、Tは一般式(A)\*



【0074】

※ ※【化23】



【0075】一般式(A<sub>1</sub>)中、eは1~4の整数を示す。合成に用いられる塩基性物質は、水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、ピリジン、トリエチルアミン、n-ブチルリチウム、フェニルリチウム、水素化ナトリウム等から任意に選択することができる。中でも、本発明のシラン化合物の塩基に対する安定性を考慮すると水素化ナトリウムが特に好ましい。また、塩基性物質の使用量はホスホニウム塩の種類や反応速度に応じて任意に設定できるが、使用量が多くなると処理、分離等が困難になるため、ホスホニウム塩1モルに対して、1から10モル、好ましくは1から1.5モルで用いられる。

【0076】また、合成においては反応溶媒を用いるこ

20\*が $-CHO$ を有している場合には $-CH_2L$ を示し、一般式(A)が $-CH_2L$ を有している場合には $-CHO$ を示す。

【0072】合成の容易さを考慮すると、一般式(A)が $-CHO$ 基(ホルミル基)を有し{一般式(A<sub>1</sub>)}、一般式(B)が $-CH_2L$ 基(リン化合物基)を有する{一般式(B<sub>1</sub>)}ことが好ましい。

【0073】

【化22】

とができ、このような反応溶媒は、エタノール、クロロホルム、ジクロロメタン、ニトロメタン、ジメチルスルホキシド、ジエチルエーテル、N,N-ジメチルホルムアミド、テトラヒドロフラン、ペンタン、ベンゼン、キシレン等から任意に選択することができ、さらに、それらの混合溶媒を用いることもできる。なお、溶媒は脱水して用いることが好ましい。これらの中では、立体選択性の高さ、反応後の分離の容易さ等から、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非水性極性溶媒が特に好ましい。

【0077】また、反応温度は $-30 \sim 80^\circ C$ であることが好ましく、 $-30 \sim 25^\circ C$ であることがより好ましく、 $-10 \sim 5^\circ C$ であることがさらに好ましい。

50

【0078】前記合成に用いるリン化合物を得るための前駆体としては、トリフェニルホスフィン、トリエトキシホスフィン、クロロジフェニルホスフィン、クロロジエトキシホスフィン等が挙げられる。

【0079】これらの前駆体を  $\text{H a l}-\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  を用いて「総合有機化合実験 I」(S. ヒューニツヒ等著、野村裕次郎等訳、532頁、森北出版)、「実験化学講座 19 (有機合成 I)」(57頁、丸善出版)等に記載の W i t t i g 方法により合成することができる。

【0080】このようにして合成された、一般式 (I) で表され、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  の 1~4 個が  $-\text{CH}=\text{CH}-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  を有するシラン化合物を、一般式 (I) で表され、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_5$  の 1~4 個が  $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Y}-\text{SiR}_{1(3-a)}(\text{OR}_2)_a$  を有するシラン化合物に還元する還元反応としては、R a n e y N i、還元 N i、担持還元 N i (N i / ケイソウ土)、P t O<sub>2</sub> (A d a m s 触媒)、白金黒、担持 P t (P t / C、P t / A l<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 等)、担持 P d (P d / C、P d / B a S O<sub>4</sub>、P d / C a C O<sub>3</sub> 等)、パラジウム黒、P d O 等の水素化固体触媒を用いた接触還元反応や、トリエチルシラン、トリメチルシラン等のシラン化合物、又は他の水素化剤を用いた還元反応等を用いることができる。反応の容易さ、コストの低さ等を考慮すると、R a n e y N i、担持 P t、担持 P d 等の水素化固体触媒を用いた接触還元反応が好ましい。

【0081】なお、一般式 (I) で表されるシラン化合物のうちケイ素を含む置換基が少ないシラン化合物の方が化学的に安定であり、製造上は有利である。

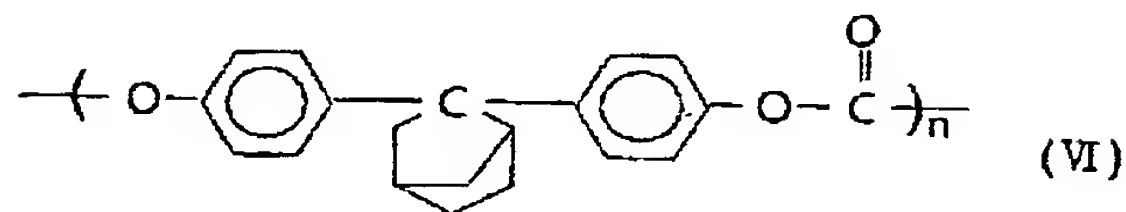
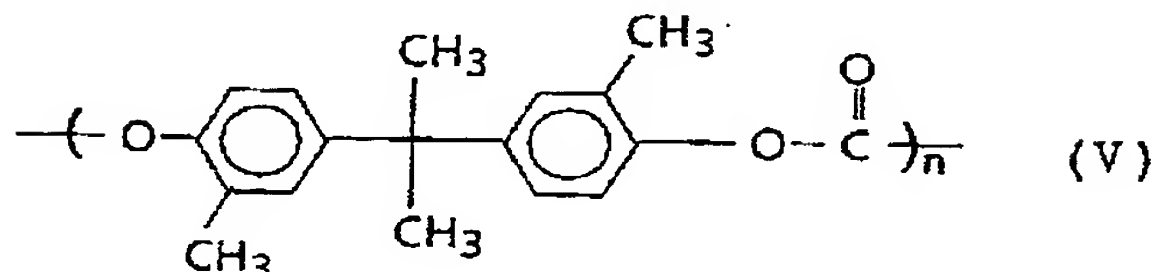
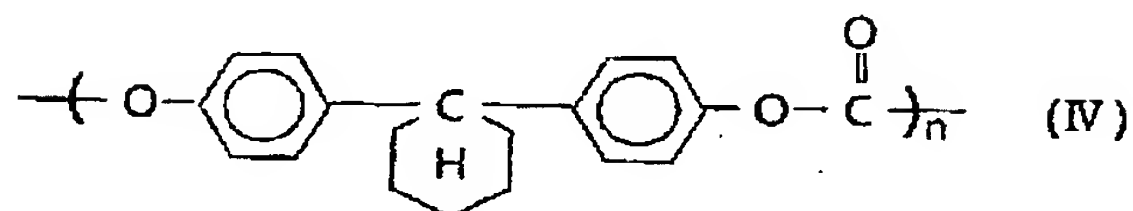
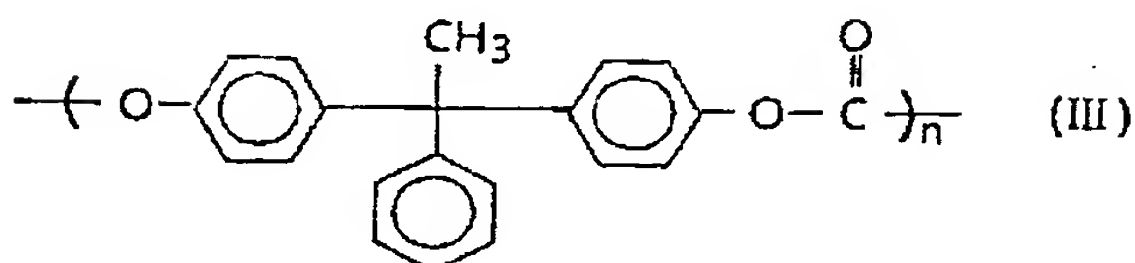
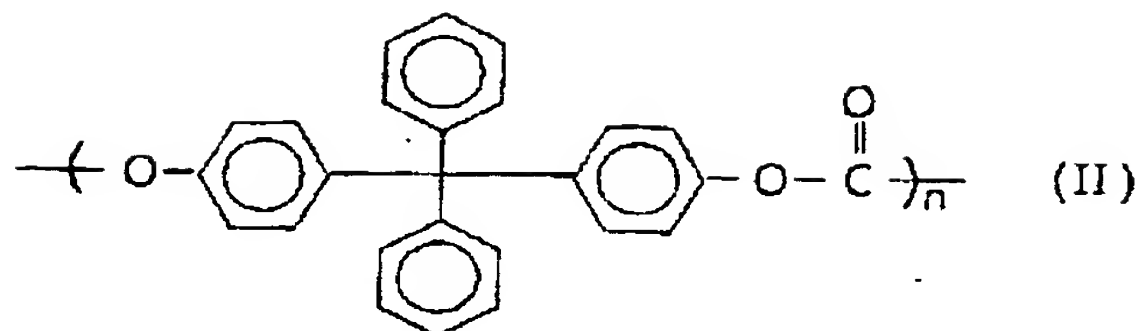
【0082】本発明の上記一般式 (I) で表される化合物は、電子写真感光体、有機 E L 素子、太陽電池、有機導電体、電子写真用キャリアのコート材、電荷発生材料の表面処理、アルミニウムやニッケルやネサガラス等と有機感光層との中間層等へ応用することができる。例えば、アルミニウム等の導電性基板上に電荷発生層及び電

荷輸送層が形成された電子写真感光体において、本発明の化合物を電荷輸送層に用いることができる。また、アルミニウム等の導電性基板上に電荷発生層、電荷輸送層及び表面保護層が形成された電子写真感光体の表面保護層に用いることができる。より具体的には、本発明の化合物を含む塗布液を塗布することによって電荷輸送層や表面保護層を形成すればよい。また、塗布した後に加熱、又はリン酸、硫酸、アンモニアガス、酢酸、塩酸、チタネート系触媒、アルミニウム系触媒等の触媒を用いることにより硬化膜を形成させてもよい。

【0083】本発明のシラン化合物を含む電荷輸送層用塗布液には、バインダーポリマー中に本発明のシラン化合物を相溶させたものを用いることができ、このようなバインダーポリマーとしては、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、メタクリル樹脂、アクリル樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、スチレンーブタジエン共重合体、塩化ビニリデンーアクリロニトリル共重合体、塩化ビニルー酢酸ビニル共重合体、塩化ビニルー酢酸ビニルー無水マレイン酸共重合体、シリコーン樹脂、シリコーンーアルキッド樹脂、フェノールーホルムアルデヒド樹脂、スチレンーアルキッド樹脂、ポリーNービニルカルバゾール、ポリシラン、特開昭 64-13061 号公報、同 64-19049 号公報、特開平 8-196293 号公報、同 8-208820 号公報、同 8-211640 号公報等の開示されたポリエステル、ポリカーボネート等の電荷輸送性ポリマー等の公知の樹脂を用いることができるが、これらに限定されるものではない。これらのバインダーポリマーのうち、相溶性、成膜性等の点から、下記構造式 (I I) ~ (V I) で示されるポリカーボネート樹脂、又はそれらを共重合させたポリカーボネート樹脂がより好ましい。

【0084】

【化 24】



【0085】上記構造式中、 $n$ は重合度を表し、50～3000の整数を示す。これらのバインダーポリマーは単独で用いたり、2種以上混合して用いることができる。電荷輸送材料としての上記シラン化合物とバインダーポリマーとの配合比（重量比）は10：1～1：5が好ましい。

【0086】また、本発明のシラン化合物を含む塗布液には、アルミニウム系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、シラン系カップリング剤等の各種のカップリング剤や市販のハードコート剤を添加してもよい。使用可能なアルミニウム系カップリング剤としては、アセトキシアルミニウムジイソプロピレート、アセトエトキシアルミニウムジイソプロピレート、アセトプロポキシアルミニウムジイソプロピレート等がある。また、チタネート系カップリング剤としては、チタン $n$ -ブトキサイド、チタンエトキサイド等がある。さらに、シラン系カップリング剤としては、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-β（アミノエチル）γ-アミノプロピル

トリエトキシシラン、テトラメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン等がある。また、市販のハードコート剤としては、KP-85（信越シリコン社製）、CR-39（信越シリコン社製）、X-12-2208（信越シリコン社製）、X-40-9740（信越シリコン社製）、X-41-1007（信越シリコン社製）、KNS-5300（信越シリコン社製）、X-40-2239（信越シリコン社製）、AY42-440（東レダウコーニングシリコン社製）、AY42-441（東レダウコーニングシリコン社製）、AY49-208（東レダウコーニングシリコン社製）等を使用することができる。さらに、表面エネルギーを低下させるため、フッ素を含有する化合物を加えることも効果的である。

【0087】

【実施例】以下、実施例によって本発明を詳細に説明する。

【0088】（合成例1）

ーシラン化合物（1）[表1]の合成ー

窒素置換した二口フラスコに3-ヨードプロピルトリメトキシシラン25gを入れ、トルエン200mlに溶解させた。次いで、トリフェニルホスフィン27gを加えた。その後、攪拌しながら、7時間加熱還流した後析出した結晶をトルエンでよく洗い減圧下溶媒を除去し、白

色結晶のホスホニウム塩 36.5 g を得た。得られたホスホニウム塩の融点は 102.0 ~ 102.5 °C であった。また、このホスホニウム塩の IR 吸収スペクトルを図 1 に示す。

【0089】窒素置換した二口フラスコに上記のホスホニウム塩 15 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 300 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5 °C に冷却し、水素化ナトリウム 1.05 g を加え、15 分撹拌した。その後、撹拌しながら、N-(4-ホルミルフェニル)-N-(3,4-ジメチルフェニル) ビフェニルー 4-アミン 5.1 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間撹拌した。反応終了後、メタノール 10 ml を加え、さらに反応混合物を 3 リットルの氷水中に注ぎトルエンで抽出し減圧下溶媒を除去した後、シリカゲルでカラム精製（溶剤：トルエン）し、淡黄色の油状のシラン化合物 (1) 6 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 2 に示す。

#### 【0090】（合成例 2）

ーシラン化合物 (16) [表 4] の合成ー

窒素置換した二口フラスコに合成例 1 で合成したホスホニウム塩 15.9 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 300 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5 °C に冷却し、水素化ナトリウム 1.5 g を加え、15 分撹拌した。その後、撹拌しながら、3,3'-ジメチルー N, N'-ビス (4-ホルミルフェニル) -N, N'-ビス (3,4-ジメチルフェニル) -1,1'-ビフェニルー 4,4'-ジアミン 6.0 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間撹拌した。反応終了後、メタノール 30 ml を加え、さらに反応混合物を 3 リットルの氷水中に注ぎトルエンで抽出し減圧下溶媒を除去した後、シリカゲルでカラム精製（溶剤：トルエン）し、淡黄色の油状のシラン化合物 (16) 6.9 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 3 に示す。

#### 【0091】（合成例 3）

ーシラン化合物 (31) [表 6] の合成ー

ナス型フラスコに合成例 1 で合成したシラン化合物

(1) 6 g を入れ、テトラヒドロフラン 20 ml、エタノール 20 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-C 0.1 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、15 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製（溶剤：トルエン）し、さらに再結晶法（溶剤：トルエン/ヘキサン = 1/5）により精製し、無色透明の結晶であるシラン化合物 (31) 4.2 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 4 に示す。また、このシラン化合物の融点は 71.5 ~ 72 °C であった。

#### 【0092】（合成例 4）

ーシラン化合物 (46) [表 9] の合成ー

ナス型フラスコに合成例 2 で合成したシラン化合物 (1

6) 6.3 g を入れ、テトラヒドロフラン 20 ml、エタノール 20 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-C 0.2 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、15 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製（溶剤：ヘキサン/酢酸エチル = 1/1）し、淡黄色の油状のシラン化合物 (46) 5.9 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 5 に示す。

#### 【0093】（合成例 5）

ーシラン化合物 (62) [表 12] の合成ー

窒素置換した二口フラスコに亜リン酸トリエチル 50 g と (クロロメチル) フェニルトリメトキシシラン 40 g を入れ、180 °C で 5 時間加熱還流した。その後減圧下 (10 mmHg)、高温 (185 °C) で過剰の亜リン酸トリメチルを除去した。更に、残った液体を濾過し、無色の油状のリン化合物 50.4 g を得た。得られたリン化合物の IR 吸収スペクトルを図 6 に示す。

【0094】窒素置換した二口フラスコに、上記のリン化合物 30 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 300 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5 °C に冷却し、油性水素化ナトリウム 3.3 g を加え 15 分間撹拌した。その後、撹拌しながら、N-(4-ホルミルフェニル)-N-(3,4-ジメチルフェニル) ビフェニルー 4-アミン 29.7 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間撹拌した。反応終了後、500 ml のメタノールで二度再沈殿させ、黄色固体のシラン化合物 (62) 19.8 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 7 に示す。

#### 【0095】（合成例 6）

ーシラン化合物 (35) [表 6] の合成ー

ナス型フラスコに合成例 5 で合成したシラン化合物 (62) 10 g を入れ、テトラヒドロフラン 100 ml、エタノール 100 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-C 0.5 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、15 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製（溶剤：ヘキサン/酢酸エチル = 2/1）し、淡黄色の油状のシラン化合物 (35) 9.5 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 8 に示す。

#### 【0096】（合成例 7）

ーシラン化合物 (5) [表 1] の合成ー

窒素置換した二口フラスコに亜リン酸トリエチル 20 g と (クロロメチル) フェニルエチルトリメトキシシラン 22 g を入れ、180 °C で 6 時間加熱還流した。その後減圧下 (10 mmHg)、高温 (185 °C) で過剰の亜リン酸トリメチルを除去した。更に、残った液体を濾過し、淡黄色の油状のリン化合物 26.2 g を得た。得られたリン化合物の IR 吸収スペクトルを図 9 に示す。



【0097】窒素置換した二口フラスコに、上記のリン化合物 9.55 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 300 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5℃ に冷却し、油性水素化ナトリウム 1 g を加え 15 分間攪拌した。その後、攪拌しながら、N-(4-ホルミルフェニル)-N-(3,4-ジメチルフェニル)ビフェニル-4-アミン 8 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間攪拌した。反応終了後、1500 ml のメタノールで二度再沈殿させ、黄色固体のシラン化合物 (5) 9.2 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 10 に示す。

#### 【0098】(合成例 8)

ーシラン化合物 (69) [表 15] の合成ー  
ナス型フラスコに合成例 7 で合成したシラン化合物

(5) 5 g を入れ、テトラヒドロフラン 100 ml、エタノール 100 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-CO<sub>2</sub> 2 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、15 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製 (溶剤：ヘキサン／酢酸エチル = 2/1) し、淡黄色の油状のシラン化合物 (69) 4.5 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 11 に示す。

#### 【0099】(合成例 9)

ーシラン化合物 (67) [表 14] の合成ー  
窒素置換した二口フラスコに、合成例 5 で合成したリン化合物 25 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 150 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5℃ に冷却し、油性水素化ナトリウム 2.75 g を加え 15 分間攪拌した。その後、攪拌しながら、3,3'-ジメチル-N,N'-ビス(4-ホルミルフェニル)-N,N'-ビス(3,4-ジメチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン 19.6 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間攪拌した。反応終了後、1 リットルのメタノールで二度再沈殿させ、黄色固体のシラン化合物 (67) 21.1 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 12 に示す。

#### 【0100】(合成例 10)

ーシラン化合物 (50) [表 9] の合成ー  
ナス型フラスコに合成例 9 で合成したシラン化合物 (67) 10 g を入れ、テトラヒドロフラン 100 ml、エタノール 100 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-CO<sub>2</sub> 4 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、16 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製 (溶剤：ヘキサン／酢酸エチル = 2/1) し、淡黄色の油状のシラン化合物 (50) 9.2 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 13 に示す。

#### 【0101】(合成例 11)

ーシラン化合物 (20) [表 4] の合成ー

窒素置換した二口フラスコに、合成例 7 で合成したリン化合物 15 g を入れ、無水ジメチルホルムアミド 100 ml に溶解させた。次いで、反応系を -5℃ に冷却し、水素化ナトリウム 1.5 g を加え 15 分間攪拌した。その後、攪拌しながら、3,3'-ジメチル-N,N'-ビス(4-ホルミルフェニル)-N,N'-ビス(3,4-ジメチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン 10.9 g を加え、徐々に室温まで温度を上げ、2 時間攪拌した。反応終了後、1 リットルのメタノールで二度再沈殿させ、黄色固体のシラン化合物 (20) 13.1 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 14 に示す。

#### 【0102】(合成例 12)

ーシラン化合物 (72) [表 16] の合成ー

ナス型フラスコに合成例 11 で合成したシラン化合物 (20) 10 g を入れ、テトラヒドロフラン 100 ml、エタノール 100 ml に溶解させた。次いで、5% Pd-CO<sub>2</sub> 5 g を加え乾燥水素で置換し、フラスコの口を乾燥水素供給源に接続した状態で、16 時間室温で反応させた。反応終了後、Pd-C を濾過し、溶媒を減圧で除去した後、シリカゲルでカラム精製 (溶剤：ヘキサン／酢酸エチル = 2/1) し、淡黄色の油状のシラン化合物 (72) 9.1 g を得た。得られたシラン化合物の IR 吸収スペクトルを図 15 に示す。

【0103】(実施例 1、2) 合成例 1 及び 2 で合成したシラン化合物を用いて以下のように電子写真用感光体を製造した。

【0104】(下引層の形成) ホーニング処理した 30 mm φ のアルミニウム円筒基板上にジルコニウム化合物 (商品名：オルガチックス ZC540、マツモト製薬社製) 10 重量部、シラン化合物 (商品名：A1110、日本ユンカー社製) 1 重量部、イソプロパノール 40 重量部及びブタノール 20 重量部からなる溶液を浸漬コーティング法で塗布し、150℃において 10 分間加熱乾燥し膜厚 0.5 μm の下引層を形成した。

【0105】(電荷発生層の形成) x-型メタルフリーフタロシアニン 1 重量部を、ポリビニルブチラル樹脂 (商品名：エスレック BM-S、積水化学社製) 1 重量部及び酢酸 n-ブチル 100 重量部と混合し、ガラスビーズと共にペイントシェーカーで 1 時間処理して分散した後、得られた塗布液を上記下引層上に浸漬コーティング法で塗布し、100℃において 10 分間加熱乾燥した。

【0106】(電荷輸送層の形成) 次に N-(4-メチルフェニル)-N-(3,4-ジメチルフェニル)ビフェニル-4-アミン 32 重量部と前記構造式 (IV) で示されるポリカーボネート樹脂 3 重量部とを、モノクロロベンゼン 20 重量部に溶解し、得られた塗布液を、電荷発生層が形成されたアルミニウム基板上に浸漬コーテ



ィング法で塗布し、120℃において1時間加熱乾燥、膜厚20 $\mu$ mの電荷輸送層を形成した。

【0107】（表面保護層の形成）さらに、合成例1で合成されたシラン化合物3重量部とフェニルトリエトキシシラン1重量部をシリコンハードコート剤（商品名：X-40-2239、信越シリコン社製）6重量部と酢酸エチル5重量部に溶解し、得られた塗布液を、電荷輸送層上に浸漬コーティング法で塗布し、室温で乾燥させて、膜厚3 $\mu$ mの表面保護層を形成した。

【0108】また、合成例1で合成されたシラン化合物の代わりに合成例2で合成されたシラン化合物を使用した他は上記と同様に電子写真用感光体を製造した。

【0109】このようにして得られた電子写真用感光体を実機（商品名：XP-11、富士ゼロックス社製）に登載しB4のPPC用紙で1万枚の耐久試験を行った後も、感光体表面には磨耗、傷、剥離、クラック等は見られず、鮮明な画像が得られた。

【0110】（実施例3）下記の表面保護層を使用したこと以外は実施例1と同様にして電子写真用感光体を製造した。

\*20

実施例	化合物No.	添加剤		
		バインダー	PhSi(OEt) <sub>3</sub>	C <sub>8</sub> F <sub>17</sub> C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> Si(OMe) <sub>3</sub>
3	(31)	X-40-2239 12部	—	—
4	(31)	X-40-2239 12部	2部	—
5	(31)	X-40-2239 12部	1部	1部
6	(31)	X-40-2239 12部	—	2部
7	(31)	DMS-S15 12部	—	—
8	(31)	DMS-S15 12部	2部	—
9	(31)	DMS-S15 12部	1部	1部
10	(31)	DMS-S15 12部	—	2部
11	(46)	X-40-2239 12部	—	—
12	(46)	X-40-2239 12部	2部	—
13	(46)	X-40-2239 12部	1部	1部
14	(46)	X-40-2239 12部	—	2部
15	(46)	DMS-S15 12部	—	—
16	(46)	DMS-S15 12部	2部	—
17	(46)	DMS-S15 12部	1部	1部
18	(46)	DMS-S15 12部	—	2部

【0115】

【表18】

\*【0111】（表面保護層の形成）合成例3で合成されたシラン化合物6重量部をシリコンハードコート剤（商品名：X-40-2239、信越シリコン社製）12重量部、シクロヘキサノン10重量部及び酢酸2重量部に溶解し、得られた塗布液を、前記電荷輸送層上に浸漬コーティング法で塗布し、室温で乾燥させて、膜厚3 $\mu$ mの表面保護層を形成した。

【0112】このようにして得られた電子写真用感光体を実機（商品名：XP-11、富士ゼロックス社製）に登載しB4のPPC用紙で1万枚の耐久試験を行った。結果を表18に示す。

【0113】（実施例4～18）実施例3で使用されたシラン化合物及びシリコンハードコート剤（X-40-2239）の代わりに、表17に示されるものを用いた以外は実施例3と同様にして電子写真用感光体を作成し、耐久性試験を行った。結果を表18に示す。なお、表17中のDMS-S15はチッソ社から入手した。

【0114】

【表17】

実施例	鉛筆硬度	1万枚コピー後の状態		
		感光体の磨耗量	コピー画質	感光体表面状態
3	8H	148nm	良好	良好
4	8H	116nm	良好	良好
5	8H	96nm	良好	良好
6	7H	151nm	良好	良好
7	6H	195nm	良好	良好
8	6H	179nm	良好	良好
9	6H	171nm	良好	良好
10	6H	206nm	良好	良好
11	9H	55nm	良好	良好
12	9H	27.5nm	良好	良好
13	9H	22nm	良好	良好
14	8H	63nm	良好	良好
15	8H	69nm	良好	良好
16	8H	55nm	良好	良好
17	8H	50nm	良好	良好
18	7H	72nm	良好	良好
比較例1	1H	880nm	傷による画質 欠陥発生	若干の傷

【0116】（比較例1）表面保護層を形成しなかったことを除いて実施例3と同様にして電子写真用感光体を作成し、耐久性試験を行った。結果を表18に示す。

【0117】以上から、本実施例のシラン化合物が溶解性、成膜性に優れ、且つその膜は強固なものであり、優れた繰り返し安定性を示すことがわかった。

【0118】

【発明の効果】本発明のシラン化合物は新規な化合物であり、溶解性、成膜性に優れ、強固な膜を形成し、有機EL素子や電子写真感光体等の種々の有機電子デバイスに应用可能である。

【0119】また、本発明の製造方法は反応の選択性が高く、副反応もほとんど起こらないため、効率よく上記シラン化合物を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】合成例1で合成されたホスホニウム塩のIR吸収スペクトルである。

【図2】合成例1で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図3】合成例2で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図4】合成例3で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図5】合成例4で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図6】合成例5で合成されたリン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図7】合成例5で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

30 【図8】合成例6で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図9】合成例7で合成されたリン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図10】合成例7で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図11】合成例8で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

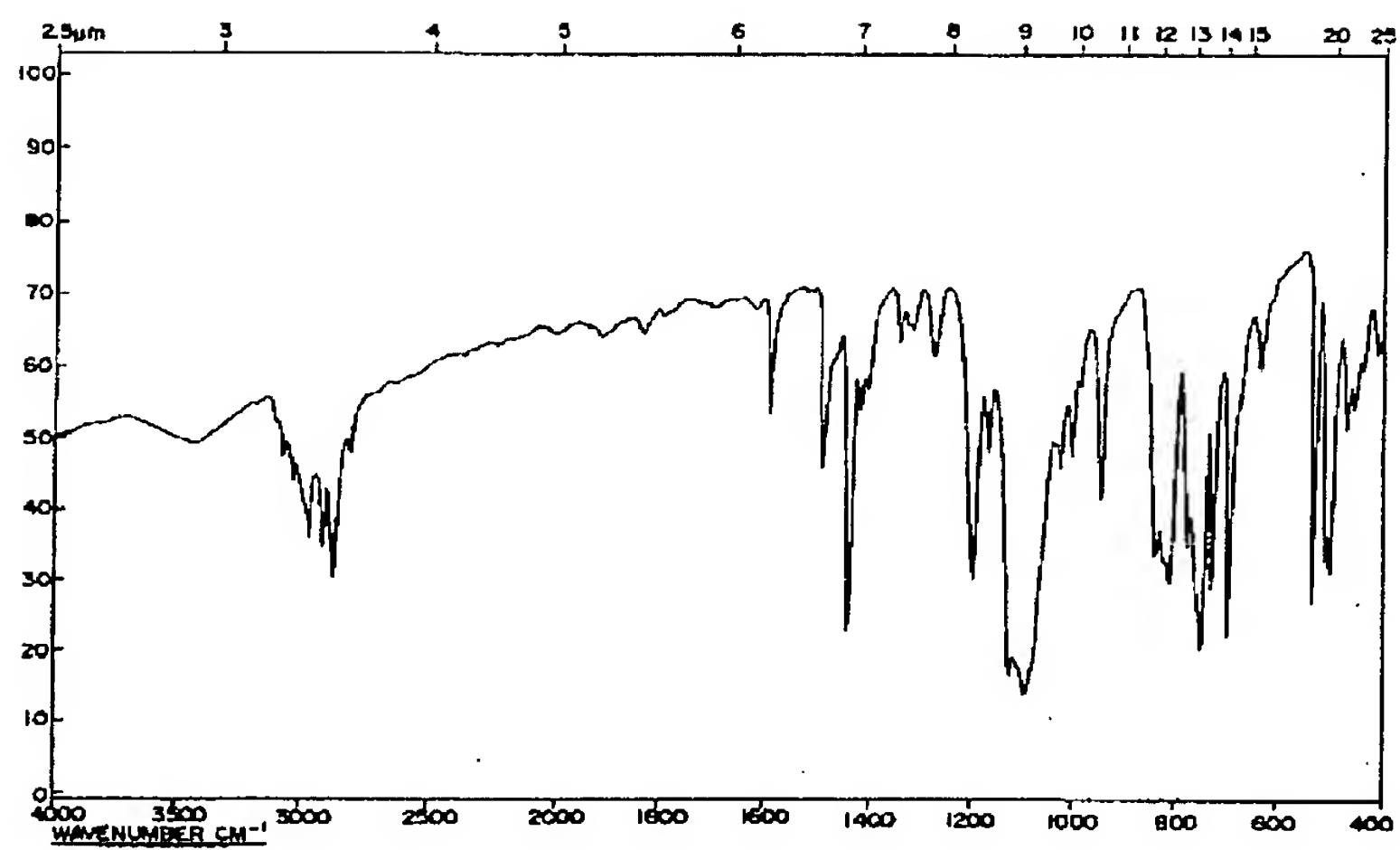
【図12】合成例9で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

40 【図13】合成例10で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

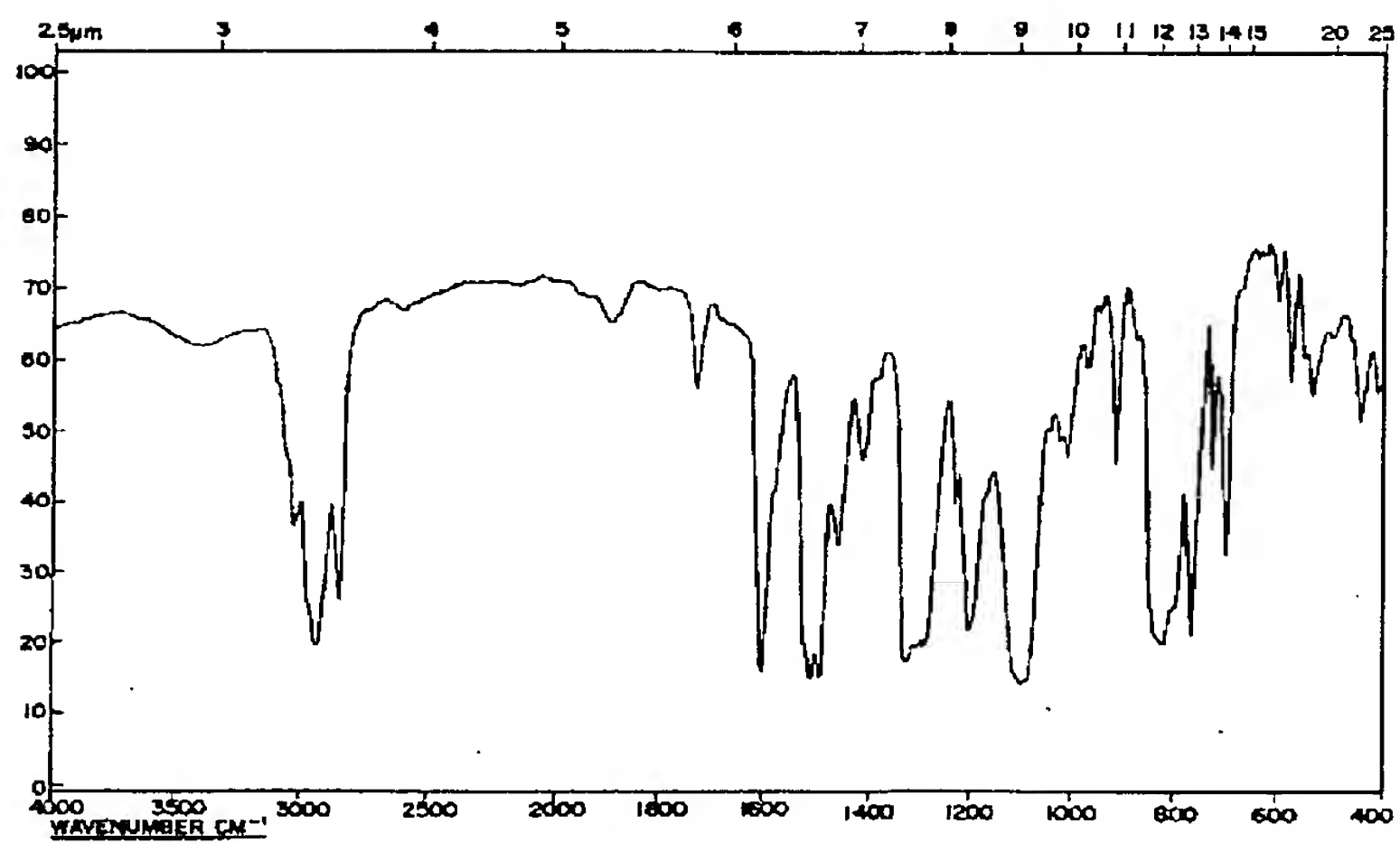
【図14】合成例11で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

【図15】合成例12で合成されたシラン化合物のIR吸収スペクトルである。

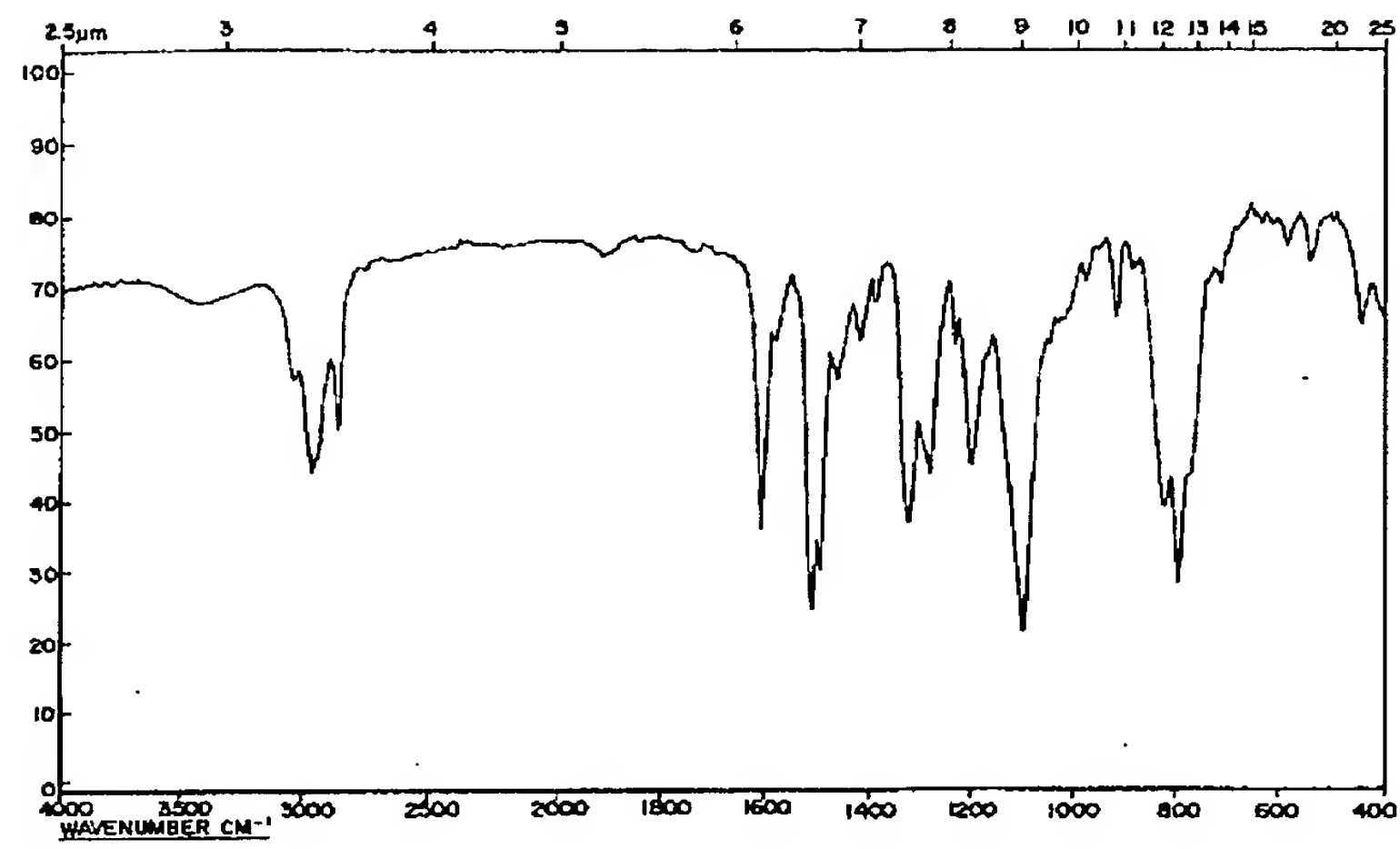
【図 1】



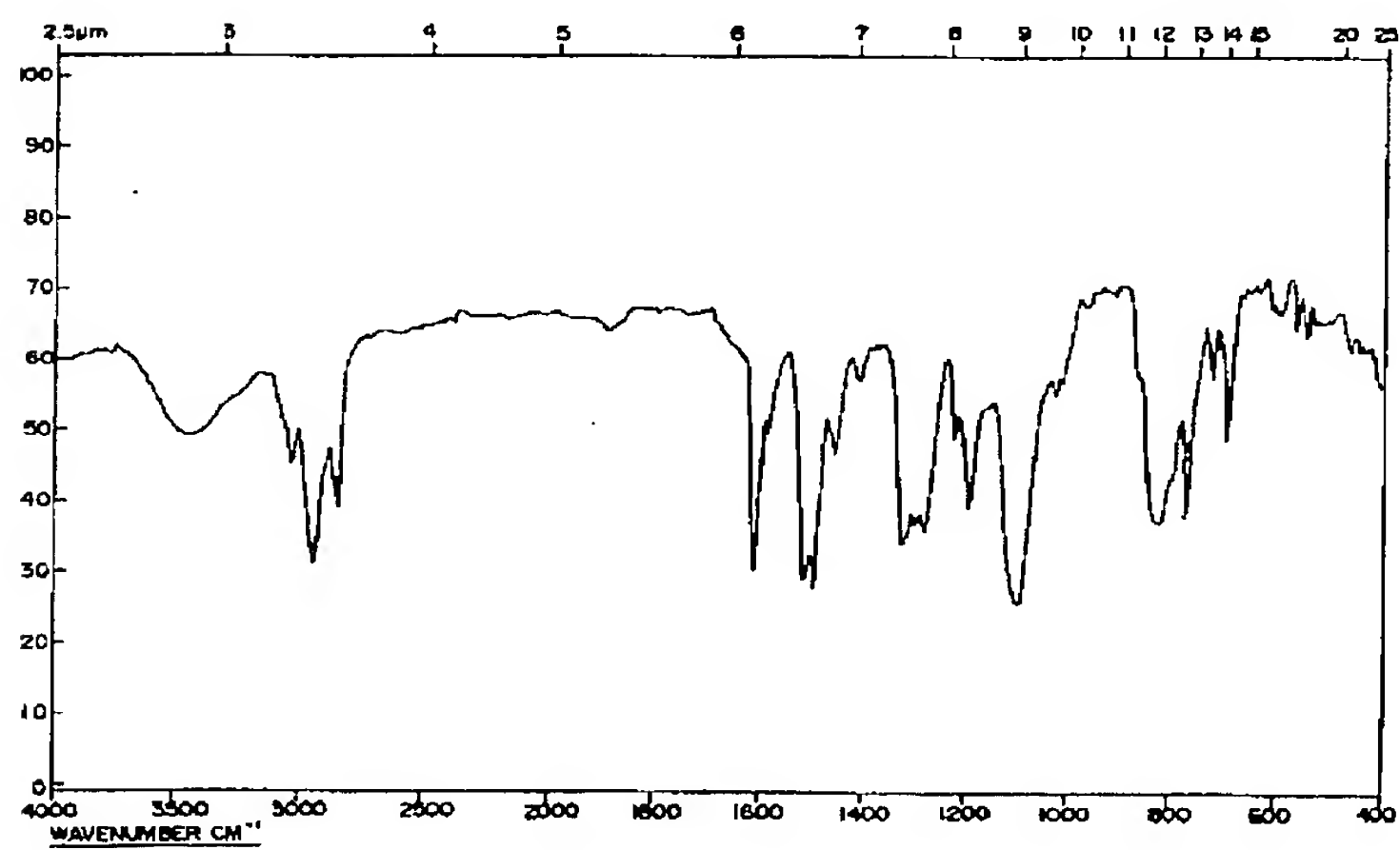
【図 2】



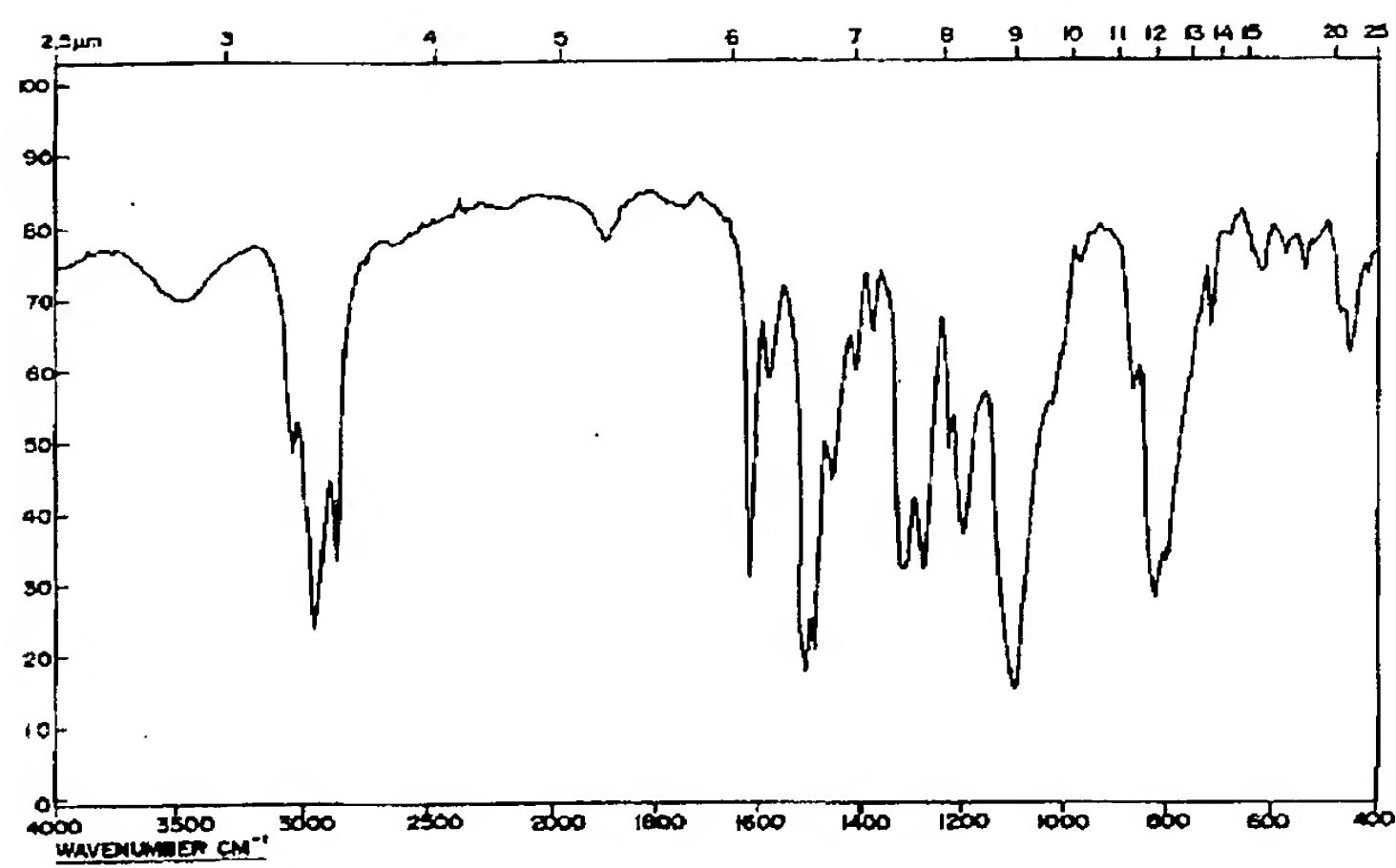
【図3】



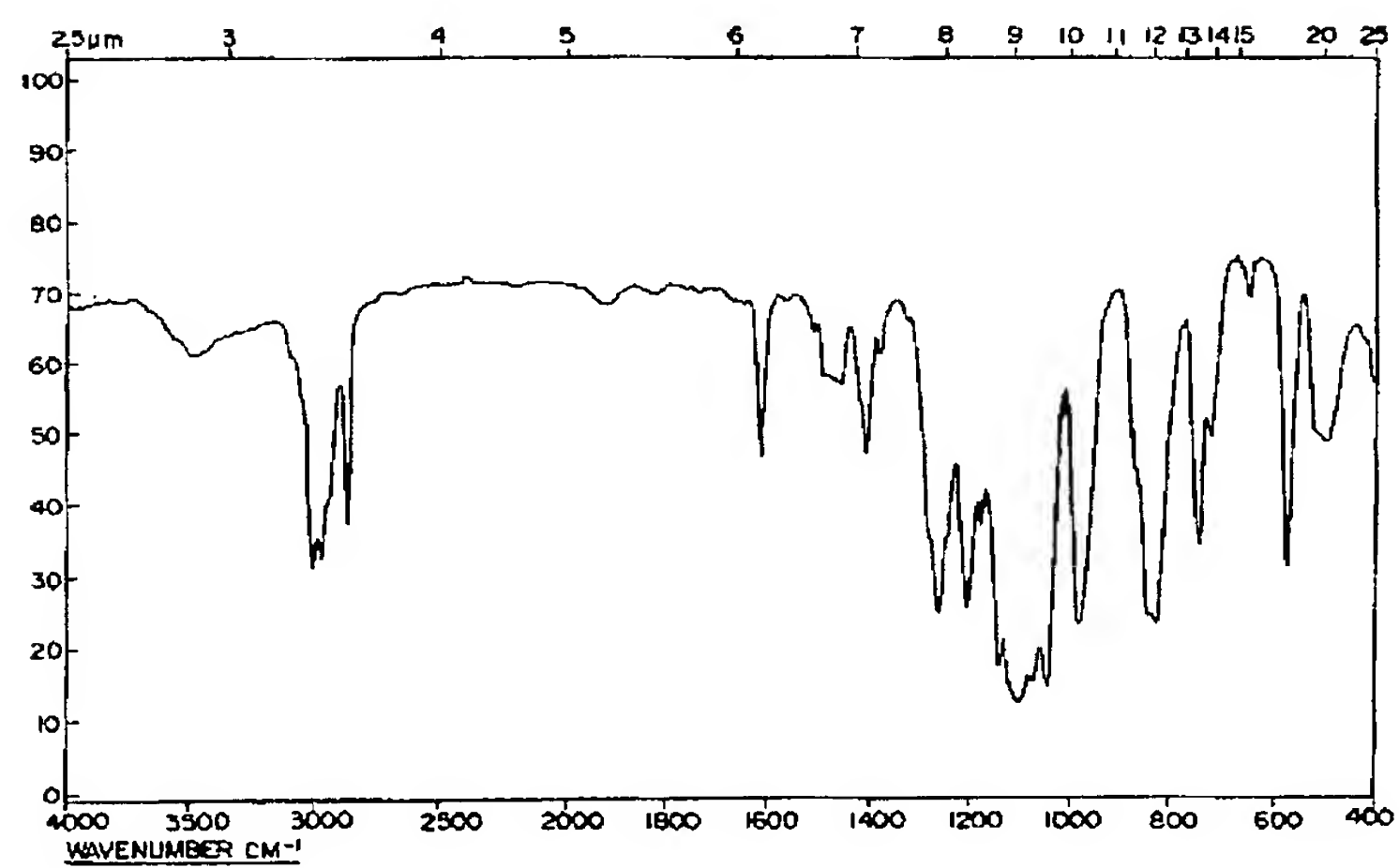
【図4】



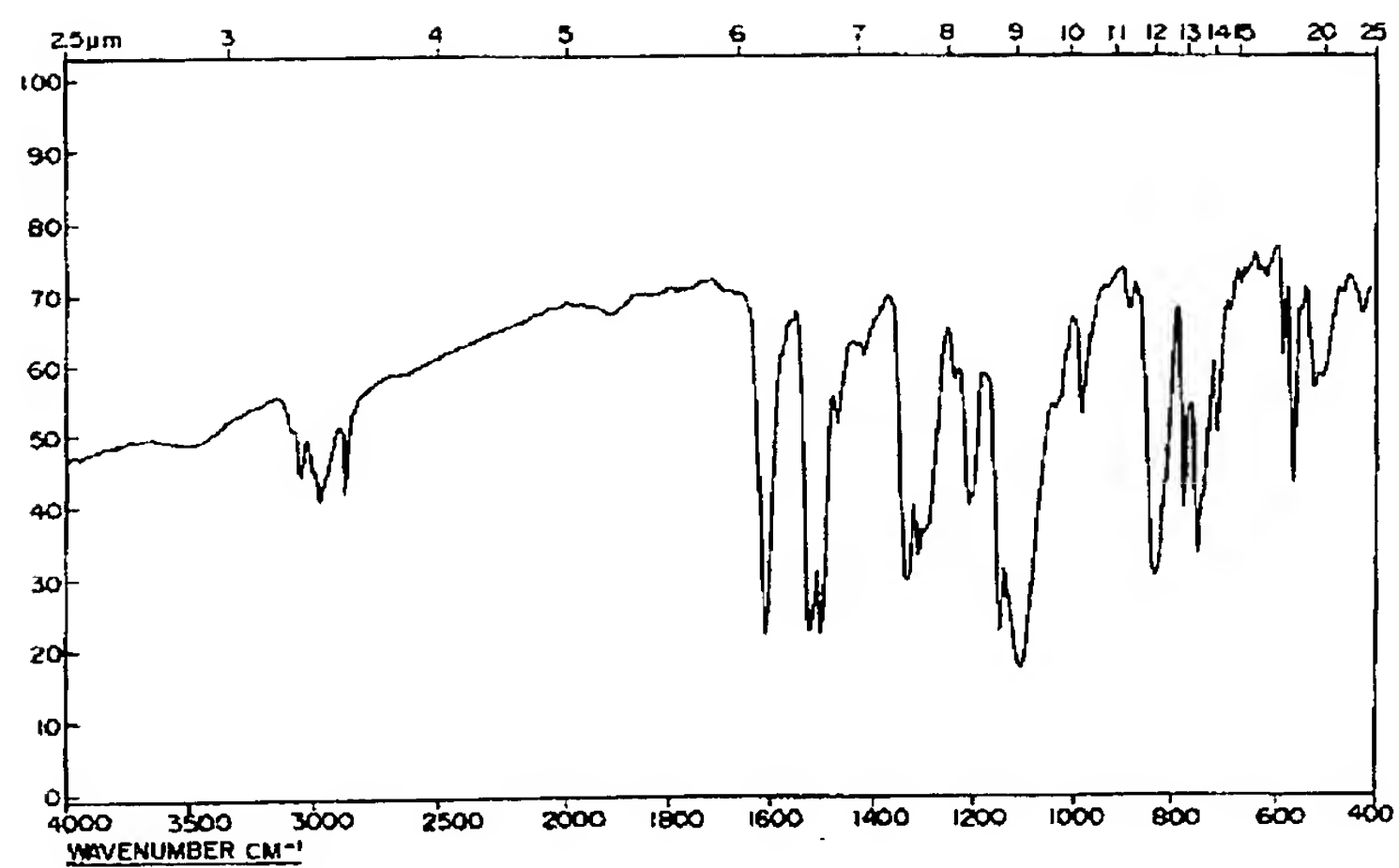
【図5】



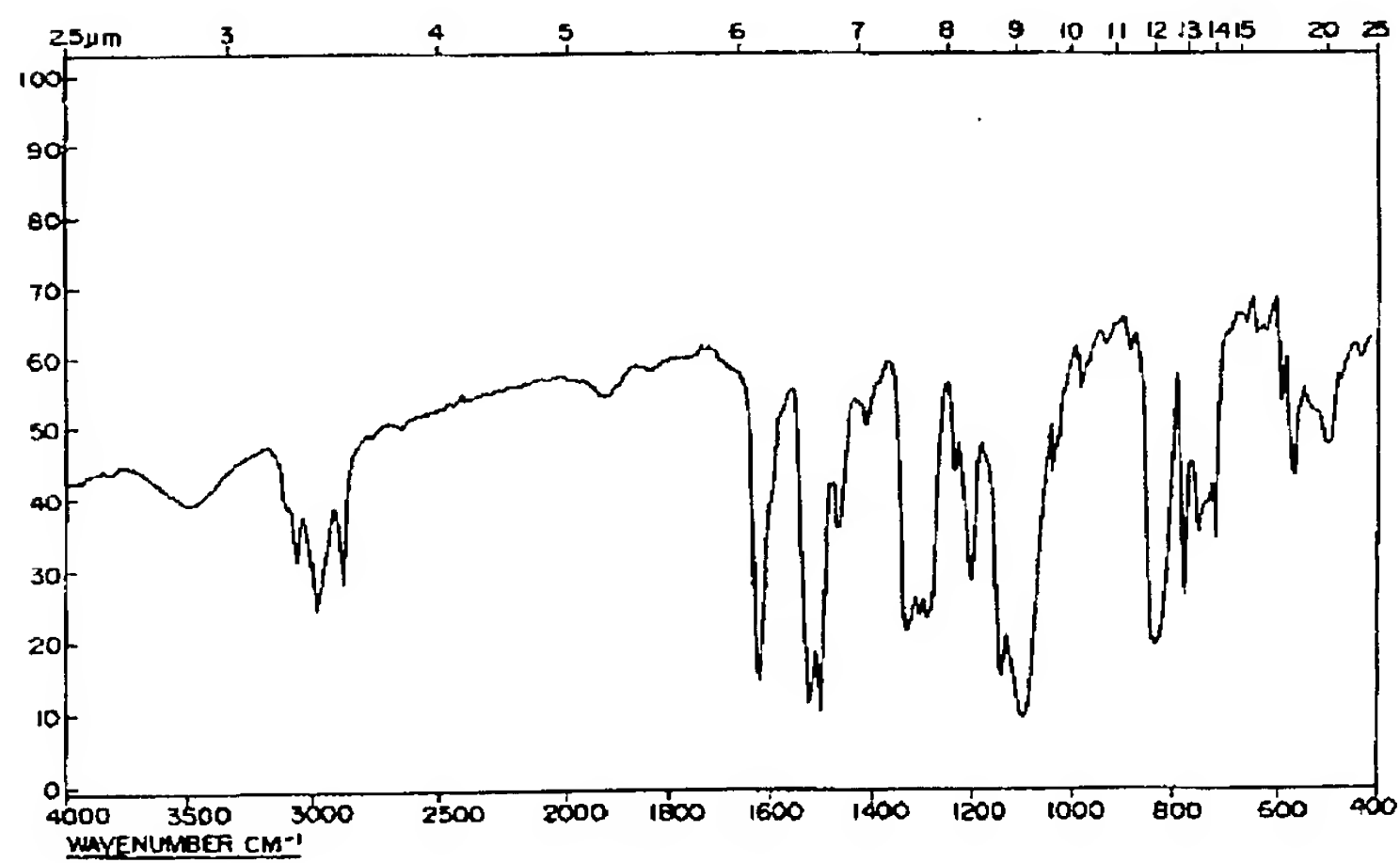
【図6】



【図7】

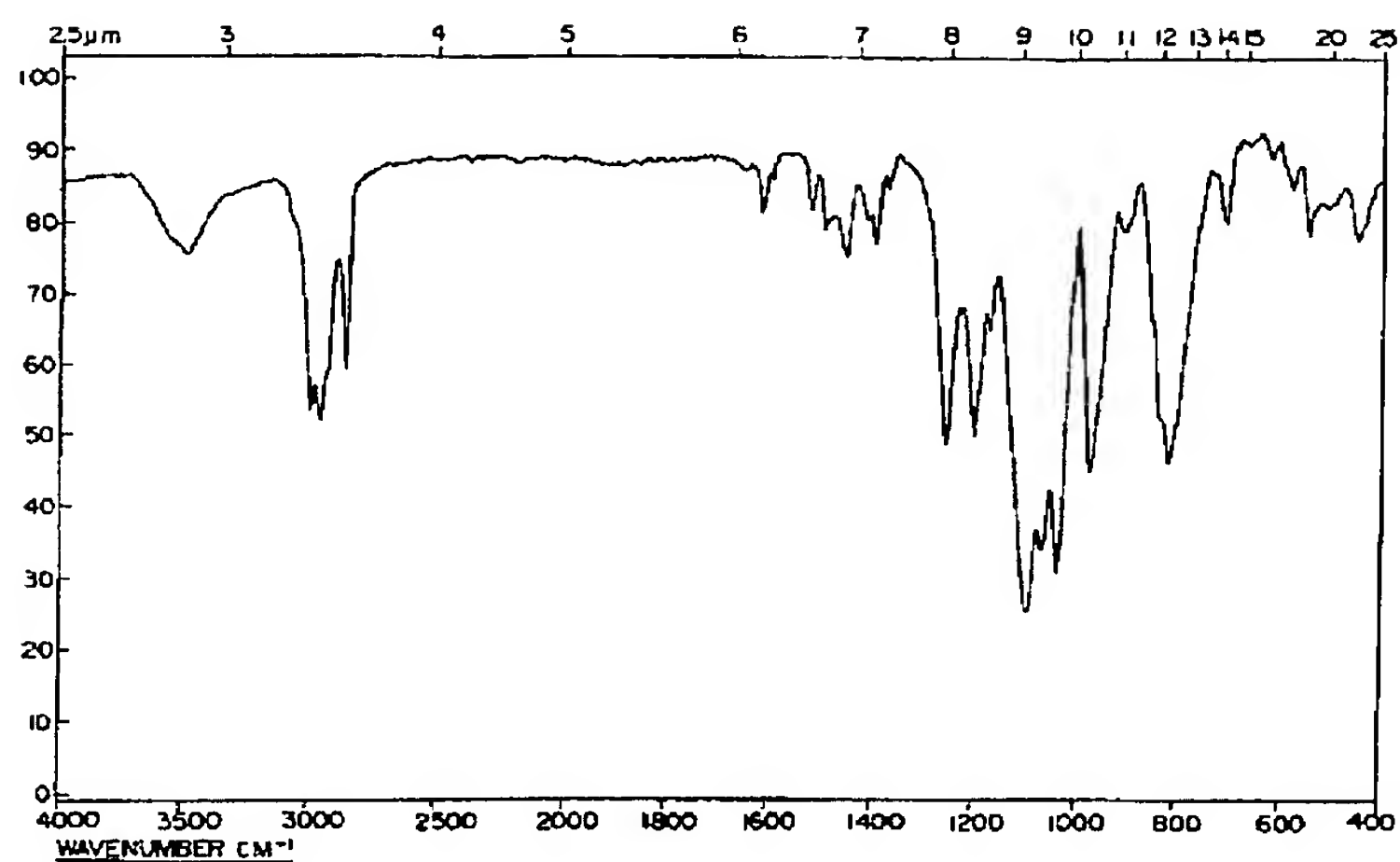


【図8】

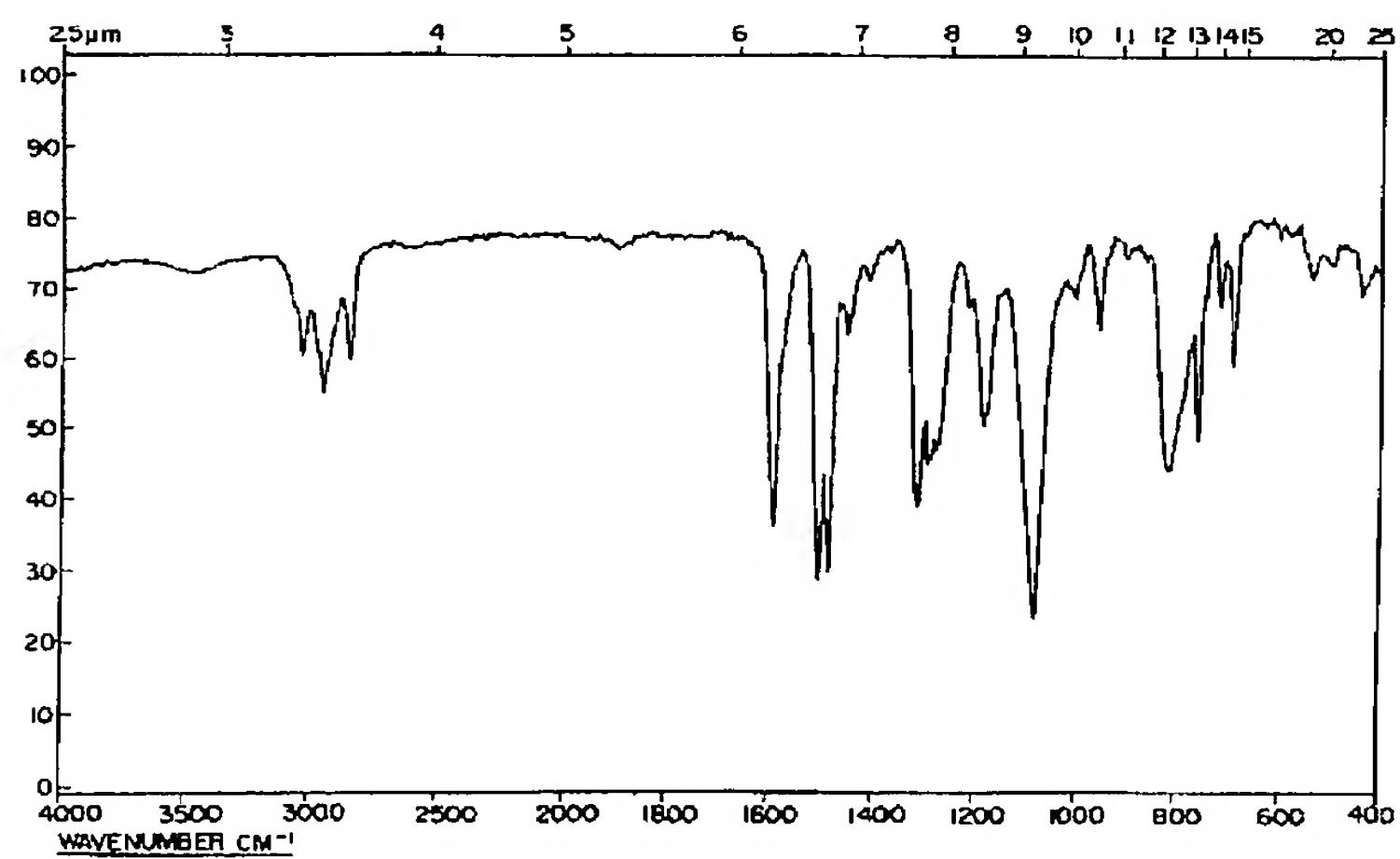




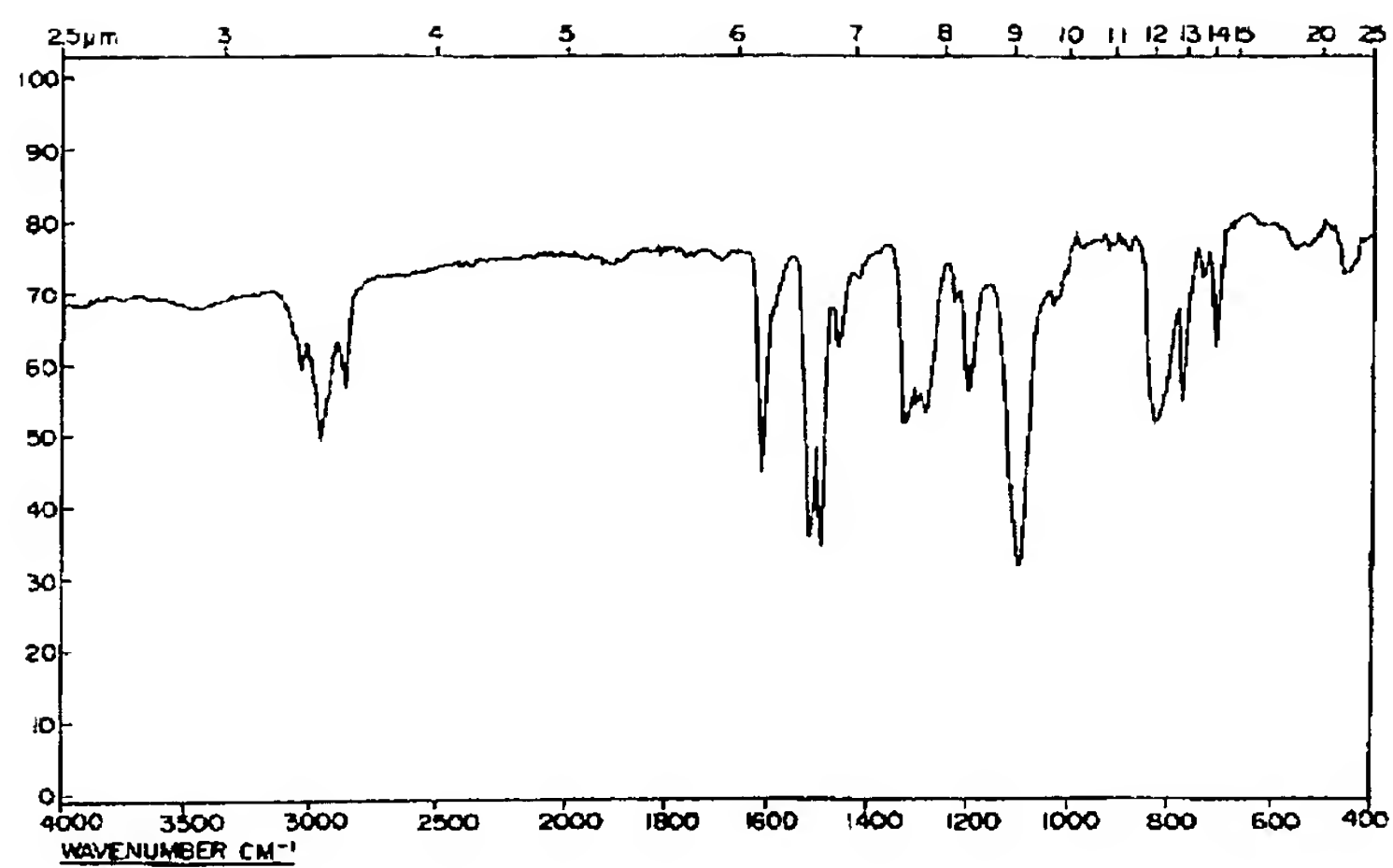
【図 9】



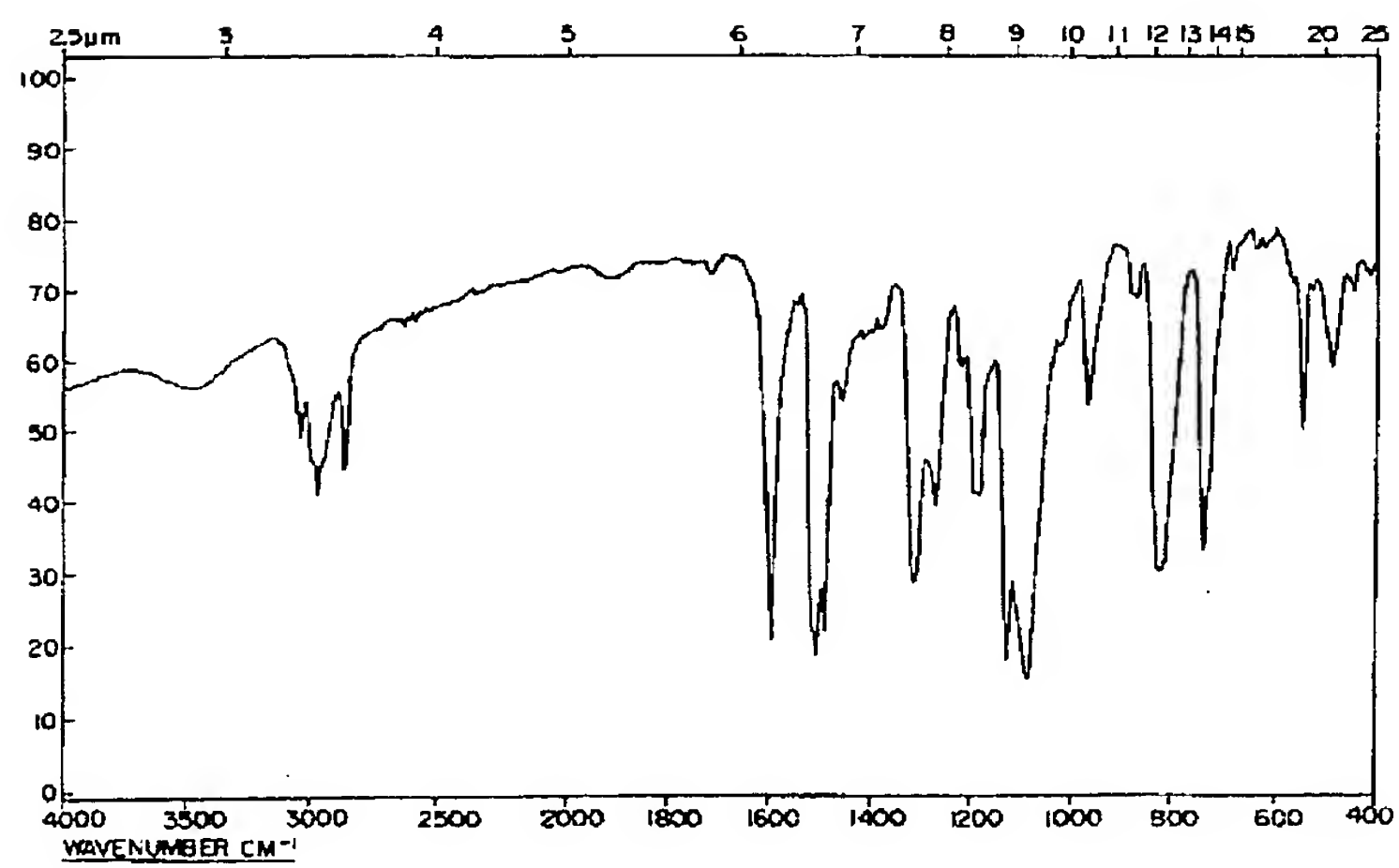
【図 1 0】



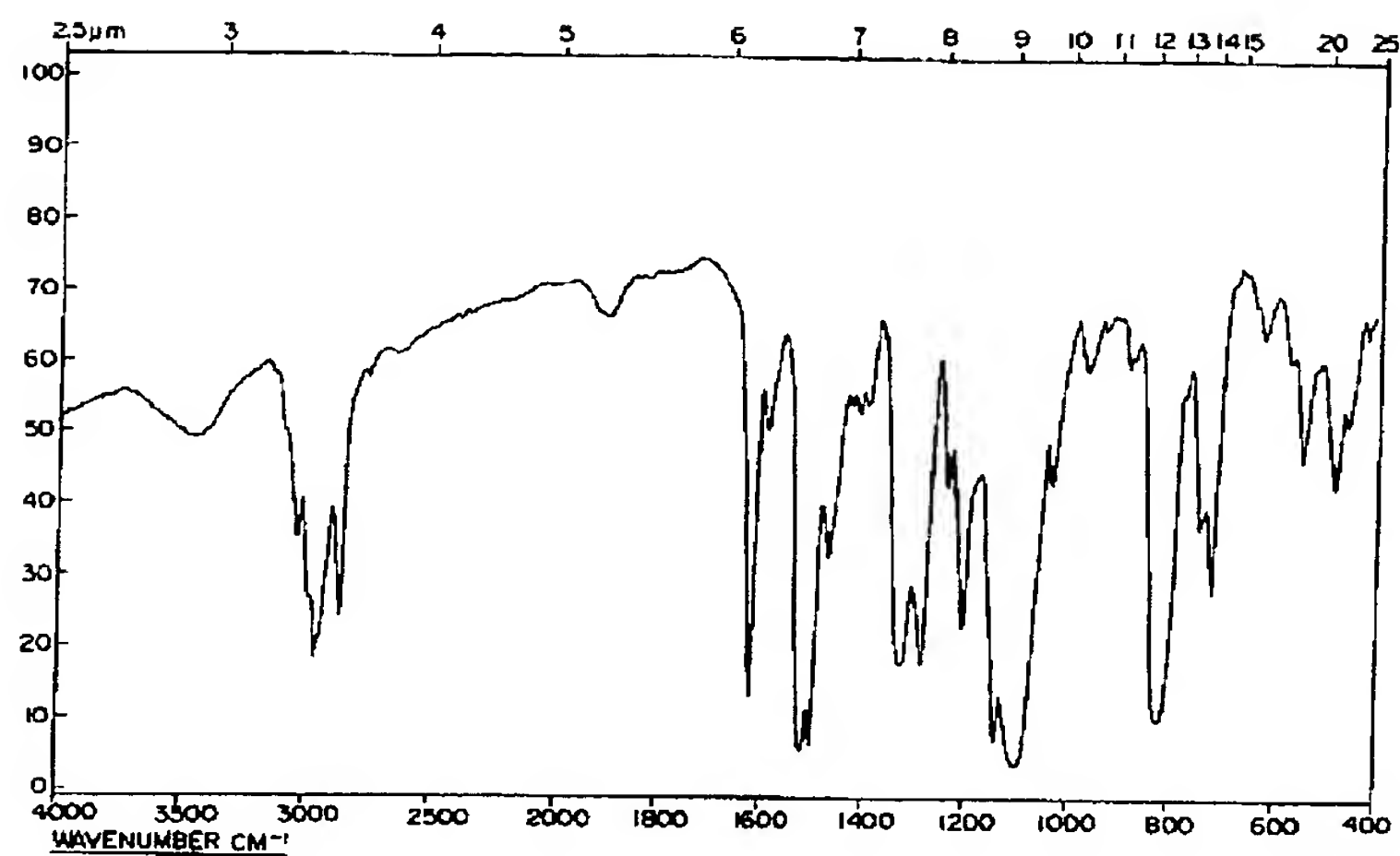
【図 11】



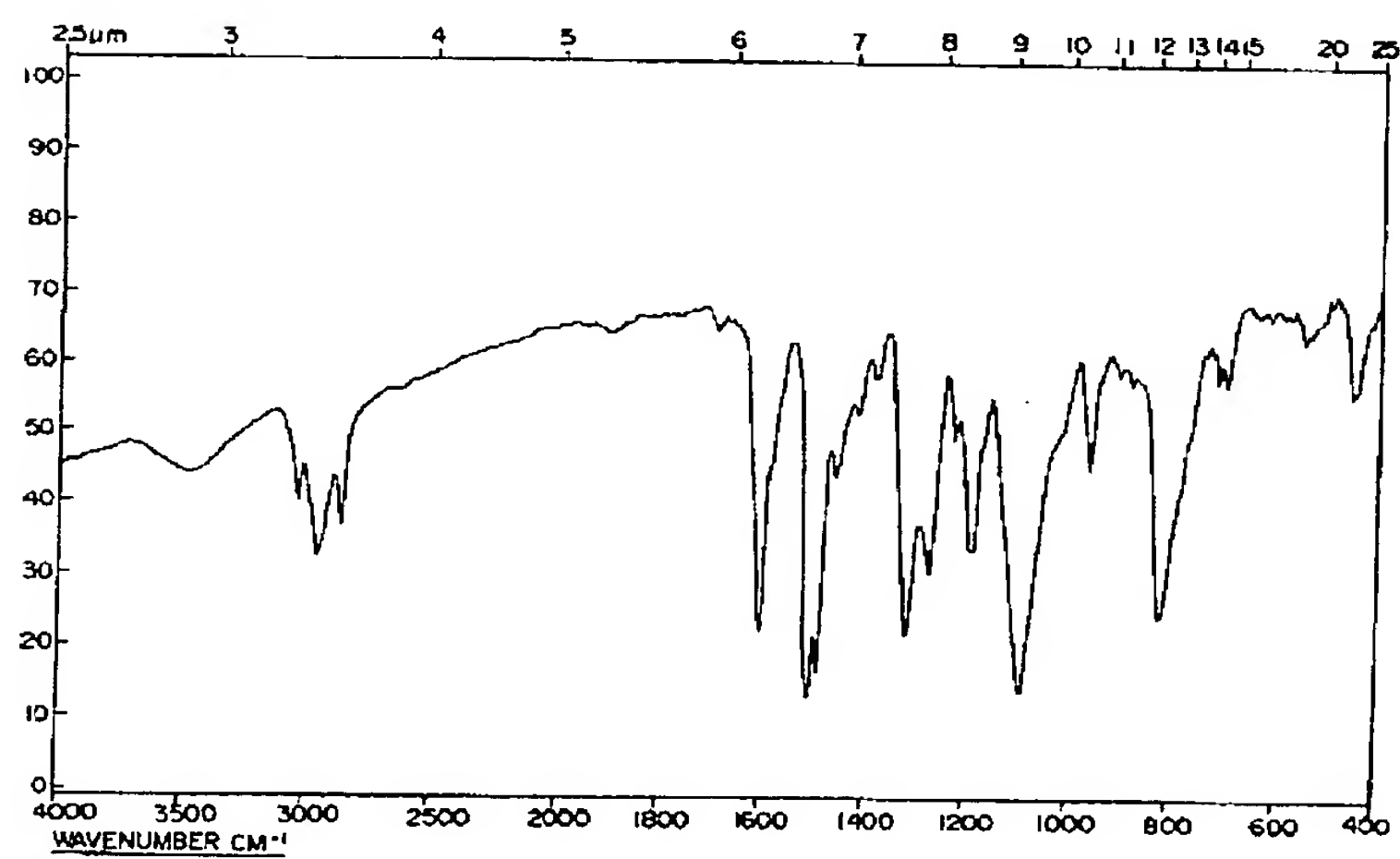
【図 12】



【図 1 3】



【図 1 4】



【図15】

